

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
de l'Université de PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR - DOCTEUR

PAR

Jacques ENGELMANN

PREMIÈRE THÈSE

Mesure des émetteurs gamma par chambres d'ionisation
Détermination du coefficient spécifique d'émission gamma
de quelques radioéléments

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 1^{er} Juin 1962 devant la Commission d'examen

MM. R. LUCAS

Président

TEILLAC

LEFORT

} Examineurs

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
de l'Université de PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

Jacques ENGELMANN

PREMIÈRE THÈSE

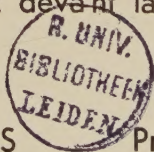
Mesure des émetteurs gamma par chambres d'ionisation
Détermination du coefficient spécifique d'émission gamma
de quelques radioéléments

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 1^{er} Juin 1962 devant la Commission d'examen

MM. R. LUCAS



Président

TEILLAC

LEFORT

} Examineurs

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

PROFESSEURS

Doyen ZAMANSKY

G. JULIA	T Analyse supérieure et	Mme LELONG	T Mathématiques (E.N.S.)
DE BROGLIE	T Théories physiques	HELLAIR	T Géologie (S.P.C.N.)
PRENANT	T Anatomie et histologie comparées	COTTE	T Physique électricité
GRASSE	T Evolution des êtres organisés	DUBOIS J.E.	T Chimie organique
PREVOST	T Chimie organique	LANOTTE	T Zoologie (E.N.S.)
CHAUDRON	T Chimie appliquée	MICHEL A.	T Chimie Minérale (Orsay)
WYART	T Minéralogie et Cristal.	OLMER	T Énergétique générale
TEISSIER	T Zoologie	ROUAULT	T Électricité (Orsay)
MANGENOT	T Biologie Vég. (Orsay)	GAUTHIER	T Mécanique appliquée
AUGER	T Physique quantique et Relativité	BARCIEWITZ	T Chimie Physique
MONNIER	T Physiologie Générale	BROSSEL	T Physique atomique
PIVETEAU	T Paléontologie	BUSER	T Physiologie comparée
ROCARD	T Physique (E.N.S.)	CAMUS	T Physiologie Vég. BMPV
CARTAN	T Mathématiques (E.N.S.)	CASTANG	T Physique (Orsay)
LAFFITTE	T Chimie générale	CURIEN	T Minéral., et Cristallog.
FAVARD	T Géométrie supérieure	MOYSE	T Physiologie Vég. (Orsay)
COULOMB	T Physique du Globe	NOIRTI	T Evolution des Etres Org.
Mlle COUSIN	T Biologie Animale (SPCN)	PANNETIER	T Chimie générale (Orsay)
CIRETIEU	T Chimie minérale	POSSOMPE	T Zoologie
DRACH	T Zoologie	PULLMANN	T Chimie théorique
KASTLER	T Physique (E.N.S.)	TEILLAC	T Physique Nucl. et Radio-activité
EPHRESSI	T Génétique	TONNELAT	T Biologie Physico-chim.
RIVIERE	T Biologie NPCN et aëdim.	VILLE	T Econométrie
GAUTHIERET	T Biologie Vég. (P.C.B.)	WILLEMART	T Chimie (P.C.B.)
LUCAS R.	T Recherches Physiques	DODE	T Chimie (Orsay)
THOMAS A.	T Biologie cellulaire	FREYMAN	T Recherches Physiques
ARNULF	T Optique appliquée.	GUINOCHE	T Biol. Vég. SPCN (Orsay)
MORAND	T Physique Enseignement	ROLLET	T Chimie (P.C.B.)
SOLEILLET	T Physique (P.C.B.)	Mlle JOSIE	T Chimie S.P.C.N.
FORTIER	T Mécanique exp. des Fluides	CHEVALLEY	T Géométrie algébrique et théorie des groupes
DANJON	T Astronomie	ARNOULT	T Electronique (Orsay)
PETIT	T Biologie maritime	CHAPPELLE	T Physique (Orsay)
QUENEY	T Météorologie et dynamique atmosphérique	DELANGE	T Mathématiques (Orsay)
GALLIE	T Embryologie	DENY	T Mathématiques Gén. Orsay
EICHORN	T Botanique	GERMAIN	T Mécan. théor. des fluides
DE CUGNAC	T Biologie Végétale (SPCN)	LUCAS G.	T Géologie
Mlle CAUCHOIS	T Chimie Physique	ALLARD	T Chimie Physique
THIELER	T Physique du Globe	BERTHELOT	T Phys. Fondamentale des Hautes Energies (Orsay)
L'HERITIER	T Biologie Générale (Orsay)	BRICART	T Météorologie et phys. de l'Atmosphère.
GRIVET	T Radioélectricité (Orsay)	Mme ALBE-FENARD	T Psychophysique
PONCIN	T Mécanique Générale	FRIEDEL	T Physique des Solides (Ors)
DUBREIL	T Arithmétique et théorie des Nombres	M. JULIA	T Etudes des Moléculaires naturelles complexes
QUELET	T Chimie Organique	LENDER	T Biol. Animale (SPCN) Orsay
CAGNIARD	T Géophysique appliquée	MAGAT	T Physico-chimie des radio-éléments
CHAMPETIER	T Chimie macromoléculaire	Mlle QUINTIN	T Electrochimie
CUVILLIER	T Micro-paléontologie	MONOD	T Chimie du métabolisme
JUNG	T Pétrographie	BENOIT	T Physiol. Anim. (Orsay)
THILLAT	T Microscopie et diffraction électronique	DE POSSEL	T Analyse numérique
WIEMANN	T Chimie organique et struc.	CHARLOT	T Chimie analytique
JACQUINOT	T Spectroscopie et physique céleste (Orsay)	HAUSSINSKY	T Radiochimie
VASSY	T Physique de l'atmosphère	LEMEE	T Physiol. Vég. BMPV (Orsay)
DESTOUCHES	T Théories Physiques	GUERIN	T Chimie M.P.C. (Orsay)
AMIEL	T Chimie générale	CHATELET M.	T Chimie (P.C.B.)
HOCART	T Minéralogie et Cristallog.	JEAN	T Physique Nucléaire (Orsay)
J.P. MATHIEU	T Physique (Optique)	MATTELLER	T Physique S.P.C.N.
COUTEAUX	T Biologie animale (P.C.B.)	MICHEL L.	T Phys. Théor. des Hites
MAY	T Zoologie (Orsay)	BERGERARD	T Energies (Orsay)
CHOQUET	T Théorie des fonctions et Topologie	BERTIN	T Zoologie (Orsay)
FELDMANN	T Biologie Végétale marine	BOUISIERES	T Electronique (Orsay)
GUINIER	T Physique des Solides (Orsay)	Mme COUTURE	T Chimie des Radioéléments (Orsay)
JOST	T Physiologie comparée	ELLENBERGER	T Thermodynamique et Méc. Physique
FORTET	T Calcul des Probabilités et Physique mathématique	FRANC	T Géologie appl. s/le terr.
SCHWARTZ	T Calcul diff. et intégral	SCINELL	T Biol. Animale (P.C.B.)
CHOUARD	T Physiologie Végétale	STOLKOWSKI	T Botanique tropicale (Orsay)
MALAVARD	T Aviation (Techn. Aéronaut.)	ACHER	T Physiologie générale
BRELOT	T Calcul diff. et intégral.	BAUDONT	T Chimie Biol. (Orsay)
NORMANT	T Synthèse organique générale	BLAMONT	T Biologie animale P.C.B.
BENARD	T Chimie Minérale	BOURREAU	T Biologie animale SPCN
BUVAT	T Botanique (E.N.S.)	CURIE D.	T Géophysique Ionosphère
DUGUE	T Statistiques Mathématiques	DURAND-DELGA	T Botanique
SOULAIRAC	T Psychophysique	FRON	T Physique (M.G.P.)
ULICH	T Physiologie Végétale	HELLER	T Géologie
MARECHAL	T Optique théorique et Appl.	TORTAT	T Chimie organique (Orsay)
KIRRMANN	T Théories Chimiques	CAILLEUX	T Physiologie végétale
CHADEFAUD	T Botanique	MAGNAN	T Calcul des Probabilités
Mlle LE BRETON	T Physiologie de la nutri.	DAUDEL	T Géologie (S.P.C.N.)
SALEM	T Mathématiques générales	Mlle FOURCHOY	T Physique (S.P.C.N.)
LELONG	T Appl. de l'analyse à la géométrie	Mme CHOQUET-BRUHAT	T Mécanique ondulatoire appl. à la Chim. Théor. et à la Phys. Nucléaire
DEVILLERS	T Anatomie et Histologie Comp.	Mlle VEIL	T Biol. Végétale (SPCN)
EHRESMANN	T Topologie Algébrique	LWOF	T Méc. Analytique
FRANCON	T Physique (S.P.C.N.)	SIENRUNK	T et Méc. céleste
GLANCEAUD	T Géographie phys. et Géologie dynamique	LACOMBE	T Physiologie Générale
CODIMENT	T Mathématiques (M.P.C.)	BROCHARD	T Microbiologie
PISOT	T Tech. Math. de la Phys.	CABANNES	T Mécan. Phys. et Expér.
ROCH	T Géologie	LESIEUR	T Métallur. des métaux Nucl.
SCHATZMAN	T Astrophysique	MAZET	T Physique P.C.B. (Orsay)
TERMIER	T Paléontologie stratig.	CAIRE	T Mécanique générale
ZAMANSKY	T Mathématiques générales	COMOLET	T Mathématiques MPC (Orsay)
LENNUIER	T Physique (M.G.P.)	CORABEUF	T Mécanique générale (Orsay)
RIZET	T Génétique (Orsay)	DELLOUE	T Géographie phys. et Géol. Dynamique
ROUTHIER	T Géologie appliquée	GORENFLOT	T Mécanique des Fluides
Mme TONNELAT	T Physique Théorique	HOULLON	T Physiologie Animale
DIXMIER	T Mathématiques (M.P.C.)	JULLIEN J.	T Physique de l'exosphère
SOUCHAY	T Chimie générale	MALGRANGE	T Botanique II (Orsay)
AIGRAIN	T Electrotechnique gén.	OLIVIER	T Biologie Animale P.C.B.
BRUSSET	T Chimie systématique	NOZERAN	T Chimie P.C.B.
M. LEVY	T Physique théorique des hautes énergies (Orsay)	BLANC-LAPIERRE	T Tech. Math. de la Phys.
Mme CHAIX	T Chimie biologique	CHEVAUGNON	T Antropologie
Mme HUREL-PY	T Biologie Végétale (PCB)	KAHANE	T Botanique II (Orsay)
PIAUX	T Chimie (M.P.C.)	SAMUEL	T Physique ENS. (Orsay)
BRUN	T Mécan. théorique des Fluides	KOURGANOFF	T Botanique (Orsay)
LEDERER	T Chimie biologique	THRY	T Mathématiques (Orsay)
Mme DUBREIL	T Mathém. (Agrégation)		T Mathématiques ENS féminine

Secrétaire Général R. POULLAIN

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur le Professeur B. Grinberg, qui m'a accordé toutes facilités pour préparer ce travail dans son laboratoire, et dont les conseils m'ont été très précieux.

Je remercie cordialement tous les ingénieurs et techniciens du Laboratoire de Mesure des Radioéléments, qui m'ont apporté une aide efficace.

Mes remerciements s'adressent tout particulièrement à Mr. J. Vagner qui a été associé, pour la partie technique, à la plupart des expériences décrites dans cette étude, et qui a collaboré à la réalisation de quelques appareils.

Je tiens également à remercier Mr. A Gandy, de la Fondation Curie, qui a bien voulu lire mon manuscrit et me faire des critiques dont j'ai tenu le plus grand compte.

J. Engelmann

INTRODUCTION

Les techniques classiques de mesure absolue (compteur 4π , coïncidences β , γ , etc.) permettent d'atteindre une bonne précision dans la détermination de l'activité de sources radioactives. Cependant, elles sont d'application longue et délicate et de ce fait, se prêtent mal aux mesures de routine.

Par ailleurs, elles ne sont applicables qu'à des sources très minces et de petites dimensions, préparées en général par prélèvement d'une partie aliquote de la solution à mesurer. Les solutions dont l'activité spécifique est supérieure à une dizaine de $\mu\text{C/g}$ ne peuvent être mesurées par ces techniques qu'après dilution, avec les risques d'erreur et de contamination qu'une telle opération comporte. Les sources solides, trop épaisses ou trop actives pour pouvoir être mesurées directement, ne sont justiciables de ces techniques qu'après mise en solution.

Pour des mesures relatives d'activité, et particulièrement pour des mesures de routine, les qualités requises conduisent le plus souvent à utiliser comme détecteur une chambre d'ionisation gamma. En effet, pour que la forme, ou la substance constitutive de la source influent peu sur la réponse du détecteur, on a intérêt à opérer sur un rayonnement pénétrant χ ou γ . D'autre part, les dispositifs de comptage de particules ne permettent pas en général une large gamme de mesure du fait du temps de résolution de ces appareils. Il vaut donc mieux utiliser des détecteurs sensibles à l'effet global des rayonnements.

Ces chambres d'ionisation sont en général étalonnées en ampère par millicurie pour chaque radioélément au moyen d'une solution étalon. Un tel étalonnage est valable pour une géométrie source-détecteur donnée. Pour une source extérieure à la chambre, il est difficile de concilier une bonne efficacité de détection et une grande reproductibilité de la géométrie nécessaire à la fidélité des résultats. Par contre, ces qualités sont compatibles dans le cas des chambres à puits γ .

Une autre approche du problème de la mesure d'activité par chambres d'ionisation fait appel aux techniques de dosimétrie γ .

Si l'on sait mesurer la dose d'exposition produite par une source à une certaine distance, on peut remonter à l'activité de la source grâce au coefficient spécifique d'émission γ (appelé aussi coefficient K), caractéristique du radioélément. Les chambres d'ionisation utilisées sont alors des chambres-cavités air équivalentes.

De tels appareils permettent donc des mesures d'activité sans étalonnage préalable et peuvent être considérés comme des appareils de mesure absolue indirecte. Cependant les mesures sont délicates et guère plus précises que celles que permettent les chambres à puits étalonnées. C'est pourquoi, en ce domaine, ce type d'appareil sert plutôt à résoudre le problème inverse : à partir d'une source d'activité connue, déterminer le coefficient K du radioélément.

Nous rappelons, au début de ce travail les bases théoriques sur lesquelles repose la méthode de mesure par chambre-cavité. Nous avons utilisé cette méthode pour la détermination du coefficient K du Radium. Une telle mesure suppose la détermination de nombreux facteurs de correction, que nous examinons en détail.

Le chapitre suivant est consacré à l'étude des performances de quelques chambres à puits, adaptées à la mesure de différentes gammes d'activité. Nous montrons, en particulier, que, par une forme appropriée des électrodes, il est possible d'améliorer la zone d'égale sensibilité de ces chambres.

Pour déterminer le coefficient K de quelques radioéléments à partir de solutions d'activités connues, nous avons développé une chambre d'une catégorie intermédiaire, chambre à puits à parois air-équivalentes. Ici encore, il faut tenir compte de nombreux facteurs de correction, dont nous exposons le calcul. Les valeurs mesurées des coefficients K , confrontées aux valeurs calculées, permettent dans certains cas de choisir entre plusieurs schémas possibles le schéma de désintégration le plus probable.

Nous décrivons dans la dernière partie les dispositifs électrométriques associés à ces chambres, et comparons leurs performances.

CHAPITRE I

MESURES ABSOLUES INDIRECTES D'ACTIVITÉ PAR CHAMBRES D'IONISATION GAMMA

Certaines méthodes permettent de mesurer l'activité de sources radioactives sans qu'il soit nécessaire d'opérer par comparaison avec une source de référence de même nature. Cependant, elles supposent la connaissance d'une grandeur auxiliaire, aussi les classe-t-on dans les méthodes indirectes de mesure absolue. [70].

Deux catégories de chambres permettent d'effectuer ces mesures : les chambres cavités, et les chambres à air libre.

Chambres-cavités

Les chambres-cavités, universellement utilisées en dosimétrie γ ont fait l'objet d'une abondante littérature. D'assez nombreuses publications, dont la première est de L.H. Gray traitent de leur application aux mesures d'activité [1 à 6].

Dans cette partie théorique, nous nous bornerons à rappeler quelques formules que nous utiliserons par la suite.

Soit I et I_0 les courants d'ionisation fournis dans les mêmes conditions d'irradiation par deux chambres-cavités de mêmes dimensions et remplies d'air sec à la même pression ; ces chambres dont l'une est la chambre étudiée, l'autre une chambre idéale, sont supposées différer seulement par la nature de leurs parois, respectivement une substance M et de l'air. D'après le principe de Bragg-Gray :

$$I = I_0 B \quad (1)$$

où B est sensiblement égal à $\frac{S_{air}}{S}$, rapport des pouvoirs d'arrêt électroniques de l'air et de la substance vis-à-vis des électrons secondaires produits par les γ . (1)

Cette équation n'est valable que si certaines conditions restrictives sont remplies :

- il faut que les parois soient d'épaisseur suffisante pour qu'il y ait "équilibre électronique".

- il faut que la cavité soit suffisamment petite pour que les électrons secondaires perdent seulement une faible proportion de leur énergie dans sa traversée.

Des théories plus élaborées permettent de tenir compte de l'effet de densité de la substance et du processus de ralentissement des électrons secondaires [7 à 12].

Si la substance M a un numéro atomique moyen voisin de celui de l'air, elle possède pour une certaine gamme d'énergie γ des caractéristiques d'absorption voisines de celles de l'air vis-à-vis des γ et des rayonnements secondaires associés. Pour une telle substance, le coefficient B est voisin de 1. Si B est exactement égal à 1, la substance est dite "air-équivalente" ; les distributions énergétiques et angulaires des électrons secondaires produits dans le gaz et dans la paroi sont les mêmes et il n'y a plus de restrictions en ce qui concerne les dimensions de la cavité.

De l'équation (1), on peut déduire la relation entre le courant d'ionisation I_m , exprimé en ampères, et l'intensité de rayonnement NE :

(1) En toute rigueur, le pouvoir d'arrêt considéré ici est le pouvoir d'arrêt moyen par électron d'une substance pour la distribution spectrale d'équilibre des électrons de recul produits par les γ dans cette substance.

$$I_M = 1,6 \cdot 10^{-9} \frac{BM}{W} NE \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{air}} \quad (2)$$

où : M est la masse d'air en g contenue dans le volume d'ionisation

N nombre de photons par cm² et par sec au point où est située la chambre

E énergie des photons en eV

$\left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{air}}$: coefficient massique d'absorption vraie de l'air vis-à-vis des γ considérés, exprimé en cm²/g

W énergie, en eV, nécessaire pour créer une paire d'ions dans l'air (actuellement, la valeur "recommandée" pour W est 34 eV) [13].

Si l'irradiation est due à une source d'activité A millicuries, placée à une distance D de la chambre, on aura :

$$I_M = 7,17 \cdot 10^{-11} \frac{BM}{D^2} A.K \text{ ampère} \quad (3)$$

où K est le coefficient spécifique d'émission γ du radioélément et s'exprime en r-cm² mc⁻¹ h⁻¹.

Le coefficient K d'un radioélément donné est défini comme étant le débit de dose d'exposition en roentgens par heure produit par une source de 1 millicurie de ce radioélément à une distance de 1 cm.

Dans le cas où le radioélément considéré est le Radium, A est exprimé en milligrammes de Ra élément, et K se réfère également à une source de 1 mg.

Chambres à air libre

Les chambres à air libre, utilisées principalement en dosimétrie γ peuvent permettre de mesurer l'activité de sources γ .

On passe encore par l'intermédiaire du coefficient K du radioélément, mais il n'y a pas lieu de tenir compte d'une correction de pouvoir d'arrêt, les électrons secondaires parvenant au volume utile étant tous produits dans l'air ; pour qu'il en soit effectivement ainsi, il faut remplir la chambre sous une pression de plusieurs atmosphères, même si la distance interélectrode est d'une cinquantaine de cm. [71]

En étudiant avec une très grande minutie tous les facteurs entrant en jeu dans cette mesure, H.O. Wyckoff est parvenu à mesurer avec une grande précision l'activité d'une source de ⁶⁰Co et d'une source de ¹³⁷Cs : l'erreur probable sur ces déterminations était de 0,6 % [72].

A cette catégorie de chambres appartient un appareil plus anciennement conçu, dû à Savel [73, 74]. C'est une chambre à diaphragme, mais dont la distance interélectrode est inférieure au parcours des secondaires ; aussi doit-on tenir compte dans la mesure d'un coefficient d'efficacité dépendant de l'énergie des photons. Pour les radioéléments dont le schéma de désintégration est connu, cette chambre permet des mesures d'activité à ± 5 % près.

Calcul du coefficient K d'un radioélément

Pour les radioéléments dont le schéma est bien connu, le coefficient K est calculable.

Soit $a_1, a_2, \dots, a_i, \dots$ les rapports d'embranchement des γ émis d'énergies $E_1, E_2, \dots, E_i, \dots$ MeV. D'après sa définition, le coefficient K du radioélément aura pour valeur :

$$K = \frac{3,7 \cdot 10^7 \times 3,600}{4 \pi \times d} \times 1,6 \cdot 10^{-6} \sum \left[a_i E_i \frac{\mu_i}{\rho} \right] \quad (4)$$

où $\frac{\mu_i}{\rho}$ est le coefficient massique d'absorption vraie de l'air vis-à-vis des γ d'énergie E_i ,

et d est l'énergie en ergs absorbée par g. d'air soumis à une dose d'exposition de un roentgen. Si l'on admet $W = 34$ eV, d aura pour valeur 87,7 ergs.

En définitive :

$$K = 193 \sum \left[a_i E_i \frac{\mu_i}{\rho} \right] \quad (5)$$

Si les γ sont partiellement convertis, il faut tenir compte des coefficients de conversion interne α_i , et la formule plus générale s'écrit :

$$K = 193 \sum \left[\frac{a_i}{1 + \alpha_i} \cdot E_i \frac{\mu_i}{\rho} \right] \quad (6)$$

Par convention, on ne tient pas compte dans le calcul de K des rayonnements de fluorescence.

En posant :

$$\Gamma = 193 E \frac{\mu}{\rho}$$

la formule (6) peut encore s'écrire :

$$K = \sum \left[\frac{a_i}{1 + \alpha_i} \Gamma_i \right]$$

Le coefficient K d'un radioélément se déduit alors aisément de la courbe de Γ en fonction de l'énergie (fig. 1).

Calcul de l'énergie efficace γ d'un radioélément

Pour pouvoir prévoir l'ionisation créée à distance par une source d'un radioélément, il ne suffit pas en général de connaître l'activité de la source et le coefficient K du radioélément. Le problème se pose souvent de calculer l'autoabsorption dans la source ou l'absorption dans un écran interposé entre la source et le volume sensible d'ionisation. Lorsque les γ émis par le radioélément ont tous la même énergie, le problème est facile à résoudre. Si, au contraire, chaque désintégration est accompagnée de l'émission de plusieurs γ d'énergies différentes, il faut faire la sommation des effets d'absorption sur chacun des γ . Pour faciliter les calculs, il est alors commode d'introduire une autre grandeur caractéristique du radioélément : son énergie efficace γ .

Cette grandeur est différente de la notion "d'énergie moyenne γ " généralement utilisée dans la littérature. Il ne nous semble pas correct, en effet, d'utiliser dans des calculs d'absorption une énergie, moyenne des énergies des γ émis, compte tenu de leurs intensités relatives, car c'est accorder le même poids à des γ de pouvoirs ionisants différents.

Nous considérons ici que l'énergie efficace d'un radioélément est l'énergie qu'auraient les γ d'un radioélément fictif émettant le même nombre de γ par désintégration et caractérisé par le même coefficient K que le radioélément considéré.

Cette grandeur (que nous écrirons $\bar{E}$, pour simplifier l'écriture) sera donc définie par :

$$\Gamma(\bar{E}) \sum a_i = \sum [a_i \Gamma(E_i)] \quad (7)$$

D'où le processus de calcul de $\bar{E}$:

Pour le radioélément considéré, on calcule

$$\Gamma(\bar{E}) = \frac{[\sum a_i \Gamma(E_i)]}{\sum a_i}$$

en se reportant à la figure 1, on en déduit la valeur de $\bar{E}$.

On peut remarquer que pour beaucoup de radioéléments, $\bar{E}$ est calculable alors que K ne l'est pas. Il est fréquent en effet qu'on connaisse pour une radioélément les intensités relatives des γ , donc les rapports d'embranchement à un facteur constant près, qui s'élimine dans le calcul de $\bar{E}$.

La valeur de $\bar{E}$ ainsi obtenue peut permettre des calculs d'absorption simplifiés pour des radioéléments à schéma complexe, à condition que l'épaisseur d'absorbant soit faible ($\mu x < 0,1$). Le coefficient d'absorption à utiliser sera simplement le coefficient de l'absorbant vis-à-vis de γ d'énergie $\bar{E}$.

Si l'absorbant a une grande épaisseur, la formule n'est plus applicable puisque, du fait de la filtration, $\bar{E}$ augmente. En ce cas, la valeur de $\bar{E}$ après traversée de l'écran d'épaisseur x est obtenue par :

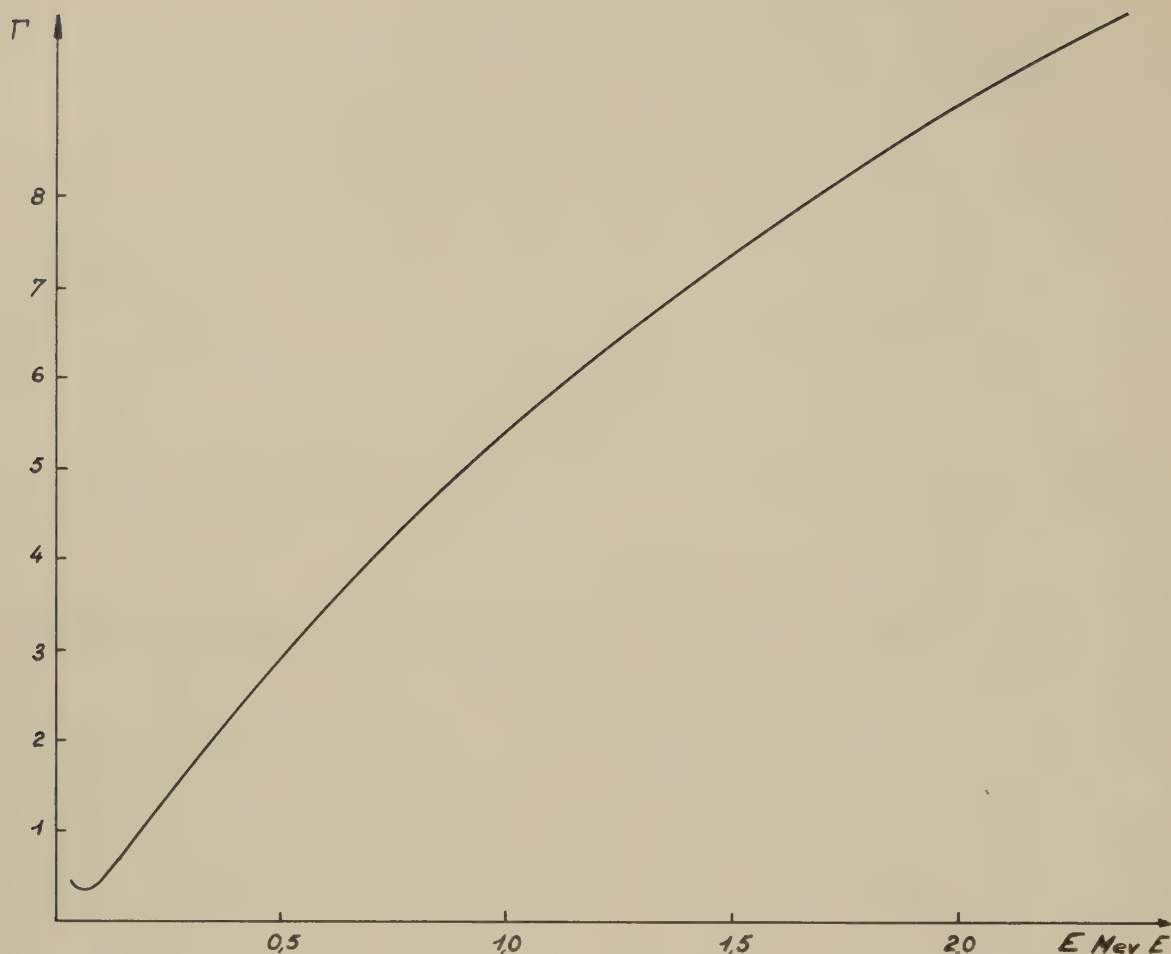


Fig. 1

$$\Gamma(\bar{E}) = \frac{\sum [a_i e^{-\mu_i x} \Gamma(E_i)]}{\sum [a_i e^{-\mu_i x}]} \quad (8)$$

où μ_i est le coefficient d'absorption totale de l'écran vis-à-vis des γ d'énergie E_i .

Par exemple, pour le Radium, à partir des tables de R. Evans donnant les intensités relatives des γ émis [14], on peut calculer les valeurs de $\bar{E}$ pour certaines conditions de filtration.

Nature de l'écran	Epaisseur	Valeur de $\bar{E}$ en MeV
Néant		0,71
Platine	0,5 mm	0,77
Plomb	5 mm	0,83
Plomb	10 mm	1,13

Si l'on veut alors calculer l'absorption due par exemple à 0,1 mm de Platine pour les γ filtrés en outre par 5 mm de Plomb, on utilise le coefficient d'absorption du Platine pour des γ de 0,83 MeV, soit 0,87 cm⁻¹. (On peut admettre en première approximation que l'ordre dans lequel sont placés les écrans n'intervient pas).

Principe de la mesure du coefficient K d'un radioélément

La valeur du coefficient K, qu'il est nécessaire de connaître pour appliquer la méthode des chambres-cavités, est utilisée également dans des calculs de protection contre les rayonnements. Elle constitue en outre un élément d'information pour établir le schéma de désintégration du radioélément. Il est donc important à beaucoup d'égards de pouvoir déterminer expérimentalement sa valeur.

D'après l'équation (3), la valeur de K peut être déduite du courant d'ionisation mesuré si l'on connaît par ailleurs la masse d'air contenue dans le volume utile de la chambre, l'activité de la source et sa distance par rapport à la chambre.

On doit remarquer que même si on est en mesure de déterminer tous ces paramètres avec une bonne précision, la valeur de K mesurée pourrait différer de la valeur calculée de près de 2 % : mais si cette différence existe, elle doit être systématique, pour tous les radioéléments. En effet, l'imprécision sur la valeur de K calculée provient de l'imprécision sur la valeur de W, qui n'est connue qu'à 1 % près. D'après les mesures les plus récentes [15 à 17], sa valeur serait de 33,7 eV (on a cependant utilisé dans les calculs la valeur de 34 eV, qui reste actuellement la valeur recommandée). La valeur de K mesurée peut être entachée elle aussi d'une erreur de 1 % due à l'imprécision sur la valeur absolue de B.

Un radioélément pour lequel il est particulièrement important de connaître la valeur de K est le Radium car il sert souvent d'étalon de référence. On peut en effet déterminer le coefficient K d'un radioélément en comparant les courants d'ionisation donnés par une source S de ce radioélément, d'activité connue, et une source étalon de Radium, placées à la même distance de la chambre. (1)

On a alors :

$$K_s = \frac{B_{Ra}}{B_s} \cdot \frac{I_s}{I_{Ra}} \cdot \frac{A_{Ra}}{A_s} K_{Ra}$$

En remarquant que :

$$\frac{B_{Ra}}{B_s} = \frac{(S_M)_s}{(S_M)_{Ra}}$$

rapport des pouvoirs d'arrêt électroniques de la paroi vis-à-vis des électrons secondaires produits respectivement par la source considérée et par la source de Ra :

$$K_s = \frac{(S_M)_s}{(S_M)_{Ra}} \cdot \frac{I_s}{I_{Ra}} \cdot \frac{A_{Ra}}{A_s} K_{Ra} \quad (9)$$

Il n'est plus nécessaire alors de connaître la masse d'air M contenue dans la chambre et la distance D. D'autre part, seules les valeurs relatives de S_M interviennent, et elles sont connues avec une bonne précision.

Ces deux méthodes de mesure, directe et relative, ont été utilisées par Sinclair et Al. et par Perry pour mesurer les coefficients K de quelques radioéléments [4, 5, 6].

En ce qui concerne la valeur du coefficient K du Radium filtré par 0,5 mm de Platine iridié, de nombreuses mesures ont été effectuées, certaines d'entre elles au moyen de chambre à air libre. Cette épaisseur de Platine peut paraître arbitraire puisqu'elle est insuffisante pour arrêter tous les β du Ra C. Son origine provient très probablement des applications médicales : le Radium

(1) L'activité des sources nécessaires pour ces déterminations est de l'ordre du mc. Une telle activité peut être déterminée avec une bonne précision dans le cas du Radium puisqu'elle est effectuée par pesée. Cependant, tout radioélément à longue période peut jouer le même rôle. Dans le cas du ⁶⁰Co par exemple, pour disposer d'une source étalon de l'ordre du mc, on peut procéder de la manière suivante : on compare cette source à une source similaire d'activité voisine (au moyen d'une chambre différentielle par exemple), on met en solution cette source de comparaison, et on mesure l'activité spécifique de la solution obtenue. Cette dernière détermination peut être effectuée avec une bonne précision par la technique des coïncidences $4\pi\beta\gamma$.

utilisé pour l'irradiation locale des tissus était enfermé dans des aiguilles de Platine normalisées (alors qu'une simple enveloppe de verre aurait risqué de se briser spontanément ou par choc).

Une des mesures les plus récentes, et semble-t'il la plus précise a été publiée en 1957 par Attix et Ritz [18]. Les auteurs ont utilisé pour cette mesure une chambre-cavité en graphite. Ils ont obtenu comme valeur :

$$K_{Ra} = 8,26 \pm 0,05 \text{ r cm}^2 \text{ mg}^{-1} \text{ h}^{-1}$$

Compte-tenu de cette détermination et de celle de Henry qui a obtenu une valeur très voisine, la valeur actuellement admise est de 8,25 [19].

Les dernières valeurs publiées, déduites de mesures effectuées par d'autres méthodes sont un peu plus faibles : Aglintsev et Al. [20] obtiennent par calorimétrie une valeur de 8,04 (8,90 $\pm$ 0,18 sans filtration de Platine) et Rajewsky et Al. [21] en utilisant des chambres à air libre trouvent 8,13 $\pm$ 0,2. Ces valeurs sont cependant compatibles, dans la limite des erreurs expérimentales annoncées, avec la valeur admise de 8,25.

CHAPITRE II

UTILISATION D'UNE CHAMBRE-CAVITÉ POUR LA DÉTERMINATION DU COEFFICIENT K DU RADIUM

Les mesures de K_{Ra} que nous avons effectuées ne permettent pas d'atteindre une aussi bonne précision que certaines déterminations citées précédemment. Leur justification est qu'elles permettent d'une part d'éprouver le bon fonctionnement du dispositif utilisé, d'autre part de mettre en évidence les coefficients de correction qui interviennent dans ces mesures et dont le calcul est nécessaire pour d'autres applications.

Appareillage utilisé

La chambre d'ionisation proprement dite est constituée de cylindres de graphite à grains fins et à haute pureté, usinés au $1/50^e$ de mm. Le volume de la chambre est connu d'après ses dimensions géométriques à 0,3 % près (fig.2).

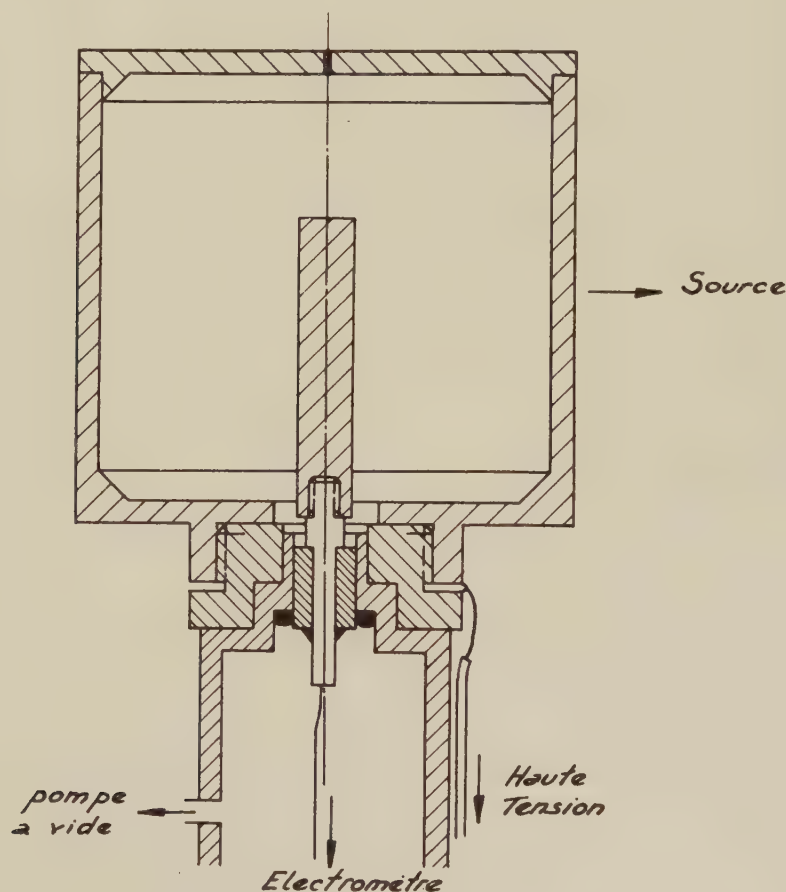


Fig.2 - Chambre-cavité en graphite.

L'électrode collectrice est reliée au dispositif électrométrique par un conducteur enfermé dans un blindage cylindrique étanche de 1 m de longueur. Lors des mesures, on fait le vide dans ce blindage pour éviter les courants d'ionisation parasites. Il est préférable d'opérer ainsi plutôt que d'utiliser un isolant autour du fil de connexion, sinon on transformerait ce blindage en détecteur par courant Compton, suivant le principe utilisé par B. Gross pour mesurer des doses d'exposition [22] ; du fait des petites dimensions de la chambre et de la longueur du blindage, ce courant parasite serait loin d'être négligeable par rapport au courant d'ionisation.

Le courant d'ionisation est mesuré, suivant la méthode de Townsend au moyen d'un électromètre Compton associé à un condensateur étalon. L'ensemble électrométrique est protégé des rayons γ directs par un mur de Plomb (fig. 3).

Pour éviter la diffusion des γ , au voisinage de la source, celle-ci est placée sur un support de balza soutenu par un cylindre de carton bakérisé de un mètre de hauteur, lui-même solidaire d'un chariot mobile sur des rails. La distance axe de la source-axe de la chambre peut être mesurée à l'aide d'un cathétomètre horizontal.

Pour une distance source-chambre donnée, les mesures de courant sont effectuées avec des épaisseurs croissantes de graphite obtenues en adaptant à l'électrode haute-tension des manchons amovibles. De ces mesures, on déduit la courbe du courant d'ionisation en fonction de l'épaisseur de graphite, courbe que l'on extrapole à zéro. On obtient ainsi le courant qui serait donné par une chambre idéale dont les parois, d'épaisseur infiniment petites, permettraient cependant de réaliser l'équilibre électronique.

Chaque mesure est effectuée successivement avec les deux polarités de la haute-tension et on calcule ensuite la moyenne des deux résultats, ce qui permet d'éliminer les courants parasites autres que celui dû au bruit de fond de rayonnement.

De ces mesures de courant d'ionisation, on peut déduire par l'équation (3) la valeur de K du radioélément. Cependant, cette équation n'est valable en toute rigueur que pour des conditions idéales :

- source ponctuelle, sans autoabsorption.
- chambre de petites dimensions par rapport à la distance source-chambre.
- gaz de remplissage de la chambre : air sec.

Les conditions opératoires étant différentes de ces conditions idéales, il faut appliquer des coefficients de correction aux paramètres mesurés. Nous avons effectué ces calculs de correction en vue de la détermination, au moyen de la chambre décrite, du coefficient K du Radium.

Source de Radium. Contenu réel et efficace

La source de Radium utilisée est enfermée dans une enveloppe cylindrique de Platine iridié à 10 %, de 0,5 mm d'épaisseur. Ses dimensions extérieures sont : diamètre 2,5 mm, longueur 3,5 mm.

D'après la Compagnie des Minerais (Belgique), son contenu réel en Radium élément est de $6,08 \text{ mg} \pm 0,7 \%$. Cette source a été par ailleurs comparée par Monsieur Chatelet (au Laboratoire d'Essais du Conservatoire des Arts et Métiers) à deux sources étalons soumises aux mêmes conditions de filtration ; la valeur déduite de cette mesure était de $6,04 \text{ mg} \pm 0,7 \%$. Compte-tenu de ces deux déterminations et des erreurs dont elles sont entachées, nous admettons que son contenu réel est de $6,06 \text{ mg} \pm 0,5 \%$.

Cependant le débit de dose d'exposition donné par une telle source à une certaine distance sera moindre que celui donné par une source ponctuelle de même activité, placée au centre d'un cylindre de Platine de 0,5 mm d'épaisseur : son "contenu efficace" est plus faible que son contenu réel pour deux raisons :

a) Autoabsorption

D'après la masse de sel de Radium contenu, et en admettant un coefficient d'absorption linéaire de ce sel vis-à-vis des γ du Ra filtrés par 0,5 mm de Platine de $0,124 \text{ cm}^{-1}$, on calcule [18] que l'autoabsorption de cette source est de 1 %.

b) Epaisseur efficace de Platine

Pour la source considérée le sel de Radium remplit complètement le volume intérieur du cylindre de Platine. De ce fait les rayons qui parviennent à la chambre d'ionisation traversent en moyenne une épaisseur de Platine supérieure à 0,5 mm.

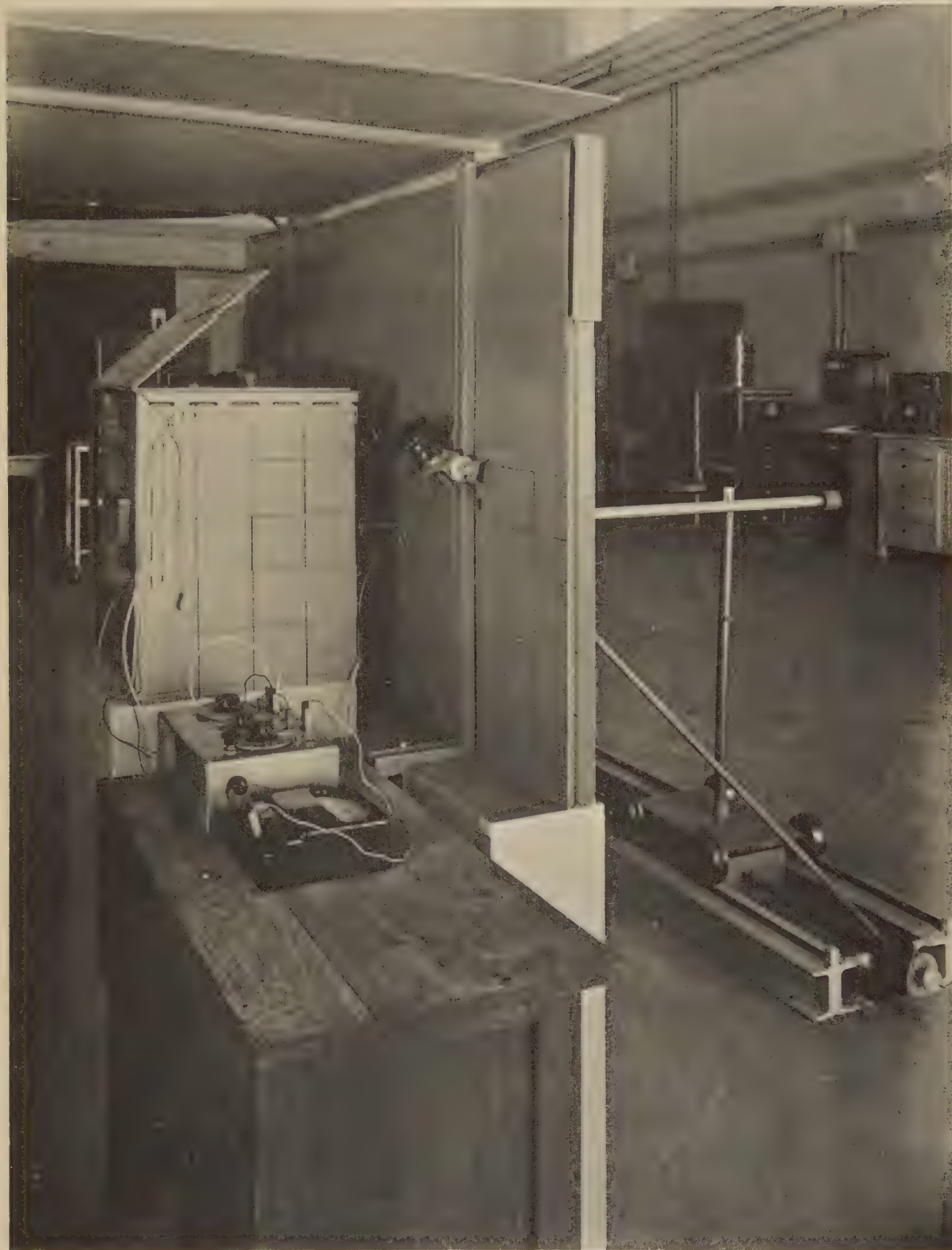


Fig.4 - Vue d'ensemble du dispositif de mesure par chambre-cavité.

Soit R_1 et R_2 les rayons intérieur et extérieur du cylindre de Platine. Considérons, dans une section droite l'élément d'aire dS hachuré (fig.4). Tous les rayons issus de cet élément et se dirigeant vers la chambre auront à traverser l'épaisseur de Platine AB. La valeur moyenne L de AB s'obtient en calculant pour la surface du cercle intérieur :

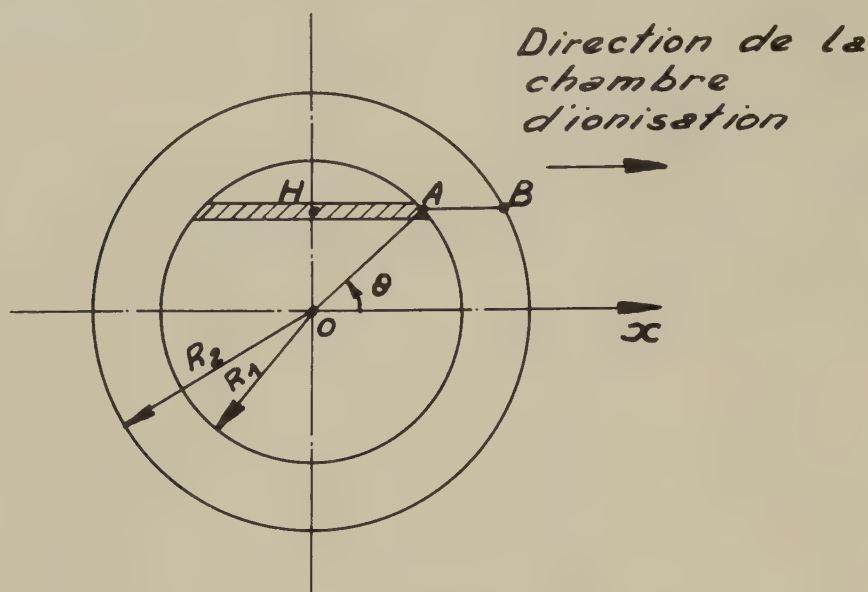


Fig.3 - Calcul de l'épaisseur efficace de Platine.

$$L = \frac{\int_s dS \times AB}{\int_s dS}$$

$$\text{soit } L = \frac{2 \int_0^{\frac{\pi}{2}} 2 R_1^2 \cos^2 \vartheta (\sqrt{R_2^2 - R_1^2 \sin^2 \vartheta} - R_1 \cos \vartheta) d\vartheta}{\pi R_1^2}$$

Cette expression peut se ramener à une intégrale elliptique. Cependant, il est plus commode pour les calculs d'en faire une évaluation approchée, ce qui conduit à :

$$L = R_2 - \frac{1}{8} \frac{R_1^2}{R_2} - \frac{8}{3\pi} R_1 \quad (10)$$

Soit, pour la source de Radium considérée :

$$L = 0,555 \text{ mm.}$$

Tout se passe donc comme si la source était rassemblée sur l'axe d'un cylindre de Platine de 0,555 mm d'épaisseur. Cet excès d'épaisseur se traduit par une absorption supplémentaire des γ de 0,8 %

Ces deux phénomènes, autoabsorption et excès d'épaisseur de Platine ont donc pour effet de diminuer dans une proportion calculable le débit de dose d'exposition produit par la source à une certaine distance. On peut se ramener au cas idéal d'une source ponctuelle filtrée par 0,5 mm de Platine, à condition d'utiliser dans les calculs "le contenu efficace" de la source, au lieu de son contenu réel.

Dans le cas considéré, le contenu efficace a pour valeur : $6,06 \times 0,99 \times 0,992 = 5,95 \text{ mc} \pm 0,5 \%$.

Influence des conditions atmosphériques

La masse M en g. d'air contenu dans le volume utile de la chambre se déduit de :

$$M = 1,293.10^{-3} \cdot V \frac{H}{76} \frac{1}{1 + \alpha t} \quad (11)$$

où V est le volume de la chambre en cm³, t la température en °C, H la pression atmosphérique en cm de mercure et $\alpha = 3,661.10^{-3}$.

En fait, on doit introduire une correction supplémentaire pour tenir compte de l'état hygrométrique de l'air.

Pour de l'air sec, à la même pression et à la même température, on mesurerait un courant

$$I_M = 1,6.10^{-19} \frac{BM}{W} NE \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{air}} \quad (12)$$

En réalité, du fait de l'hygrométrie, on mesure un courant I'_M . Ce courant peut être considéré comme la somme des courants qui auraient été donnés dans les conditions d'irradiation par l'air seul et la vapeur d'eau seule introduits séparément à leur pression partielle dans la chambre. On a donc :

$$I'_M = 1,6.10^{-19} BNE \left[\frac{m}{W_{\text{air}}} \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{air}} + \frac{m'}{W_{\text{eau}}} \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{eau}} \right] \quad (13)$$

m et m' désignant respectivement les masses d'air et de vapeur d'eau contenues et W_{eau} l'énergie nécessaire pour créer une paire d'ions dans la vapeur d'eau.

Si f est la pression partielle de la vapeur d'eau,

$$m = 1,293.10^{-3} V \frac{H - f}{76} \frac{1}{1 + \alpha t} \quad (14)$$

$$m' = 1,293.10^{-3} \times \frac{5}{8} \times V \frac{f}{76} \frac{1}{1 + \alpha t} \quad (15)$$

Par ailleurs si on suppose que les γ subissent uniquement l'effet Compton, les coefficients massiques d'absorption vraie $\frac{\mu}{\rho}$ seront proportionnels au nombre d'électrons par gramme de la substance, donc :

$$\left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{eau}} = 1,11 \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{air}} \quad (16)$$

Enfin, d'après une détermination expérimentale de Wingate et Al [23] :

$$W_{\text{eau}} = 0,894 W_{\text{air}} \quad (17)$$

Des équations (13) à (17), on déduit :

$$I'_M = 1,6.10^{-19} BNE \frac{\left(\frac{\mu}{\rho} \right)_{\text{air}}}{W_{\text{air}}} M \left[1 - 0,23 \frac{f}{H} \right]$$

soit sensiblement :

$$I_M = I'_M \left(1 + 0,23 \frac{f}{H} \right) \quad (18)$$

Pour fixer l'ordre de grandeur de cette correction, supposons que les conditions atmosphériques soient les suivantes :

$$H = 76 \text{ cm}, t = 20^\circ, \text{ l'état hygrométrique } e = \frac{f}{F_s} = 0,6$$

(où F_s est la pression de vapeur saturante à la température considérée).

D'après l'équation (18)

$$I_M = 1,0032 I'_M$$

Ainsi, la correction à apporter au courant mesuré pour tenir compte de l'hygrométrie serait dans ce cas de 0,3 %, et c'est en général l'ordre de grandeur de la correction due à cet effet.

Corrections dues aux imperfections de la chambre

a) Correction de pouvoir d'arrêt

Dans l'équation (3) intervient le coefficient B, rapport des pouvoirs d'arrêt électroniques de l'air et du graphite vis-à-vis des électrons secondaires produits par les γ . Ces valeurs des pouvoirs d'arrêt se déduisent de la formule de Bethe ; cependant, il n'y a pas encore un bon accord sur la valeur de I, potentiel moyen d'excitation de la substance, qui intervient dans cette formule. Par suite, il est préférable de procéder à une détermination expérimentale du coefficient B pour la substance considérée, ce qui permet d'ailleurs de déduire la valeur de I pour cette substance.

Whyte [10], puis Attix et Ritz [18] ont effectué cette détermination pour différentes substances en mesurant, en fonction de la pression de remplissage, le courant d'ionisation donné par des chambres de même géométrie et de nature de paroi différente, soumises au même débit de dose. Les résultats obtenus sont en bon accord avec la théorie de Spencer et Attix [9] (qui fait intervenir les dimensions de la cavité), et avec les valeurs de I de Bakker et Sègre [75].

Pour une chambre du type considéré, irradiée aux γ du Radium ces résultats conduisent à une valeur de B égale à $1,00 \pm 0,5$ %.

Nous avons vérifié ce résultat par un autre procédé : trois électrodes haute-tension de même longueur, mais de diamètres ϕ différents (1,6 4 et 6,9 cm) permettent de modifier facilement le volume de la chambre sans changer les autres conditions expérimentales. Compte-tenu des corrections de géométrie, qui seront détaillées plus loin, on trouve que $\frac{I_M}{\phi^2}$ est indépendant de ϕ , dans la limite des erreurs expérimentales. Ainsi, même lorsque le gaz de la chambre participe à la création des électrons secondaires, l'ionisation par unité de masse d'air reste constante. C'est donc que les pouvoirs d'arrêt de la paroi et de l'air sont les mêmes pour les électrons secondaires produits par les γ considérés et $B = 1$.

b) Défaut de saturation

De la mesure du courant d'ionisation I_M pour différentes valeurs de la haute-tension V appliquée, on déduit la courbe de I_M en fonction de $x = \frac{1}{V}$, que l'on extrapole à $x = 0$.

Si I'_M est le courant extrapolé, le défaut de saturation est donné par le rapport :

$$\frac{I'_M - I_M}{I_M}$$

A partir d'une cinquantaine de volts, sa valeur ne décroît que très lentement lorsque la tension croît. Aussi, avons-nous utilisé une alimentation 150V, tension pour laquelle le défaut de saturation est de 0,1 %.

Corrections de géométrie

a) Diffusion des γ par le sol et les murs, absorption dans l'air.

La chambre d'ionisation étant située dans une pièce de grandes dimensions, (12 m $\times$ 9 m $\times$ 6 m) seuls peuvent être gênants les γ diffusés par le sol ou le mur de Plomb protégeant l'électromètre, tous deux situés à 1 mètre de la chambre. Ces γ diffusés ont pour effet d'augmenter le courant d'ionisation, mais leur contribution relative doit être d'autant plus grande que la source est plus éloignée de la chambre.

Par contre, l'absorption des γ dans l'air (théoriquement de 0,2 % par mètre) joue en sens inverse.

Ayant vérifié que la loi de l'inverse carré est très sensiblement respectée, aux autres corrections près, nous pouvons admettre que, dans la limite de précision de nos mesures, ces deux corrections se compensent.

b) Distance efficace source-chambre

Les petites dimensions de la source de Radium permettent de l'assimiler à une source ponctuelle à partir d'une distance D du centre de la chambre de 5 cm.

Si les dimensions de la chambre sont petites par rapport à cette distance D, la relation entre courant d'ionisation et distance D peut s'écrire :

$$I_0 = \frac{G V}{D^2} \quad (19)$$

où V est le volume de la chambre et G une constante de proportionnalité.

Si les dimensions de la chambre ne sont pas négligeables par rapport à la distance D, il faut introduire un coefficient de correction dans la formule (19). En effet, dans une chambre-cavité, l'ionisation est due principalement aux électrons secondaires arrachés à la paroi par le rayonnement γ . Or, les différents points de la paroi ne sont pas soumis au même débit de dose, puisque leur distance à la source n'est pas constante. Dans ces conditions, pour établir la relation entre courant d'ionisation I et distance D, il faut calculer la contribution apportée à ce courant par chacun des éléments de la paroi de la chambre et intégrer sur toute la paroi. Un tel calcul, dans lequel on doit faire intervenir la distribution spectrale des électrons secondaires semble très ardu.

Pour une chambre d'ionisation qui ne remplirait plus les conditions de Bragg-Gray, et pour laquelle au contraire l'ionisation serait due principalement aux électrons secondaires arrachés au gaz de remplissage, il est plus facile de calculer le coefficient de correction cherché.

On peut considérer alors que la chambre est constituée de chambres élémentaires de volume dV situées à des distances δ de la source, chacune de ces chambres apportant sa contribution δI au courant d'ionisation. On aura dans ces conditions :

$$I = G \int_v \frac{dV}{\delta^2} \quad (20)$$

Nous admettons qu'en première approximation, cette relation est applicable également à des chambres-cavités. Elle peut se ramener à la relation (19), à condition de remplacer D par la "distance efficace" D_{ef} telle que :

$$\frac{V}{D_{ef}^2} = \int_v \frac{dV}{\delta^2} \quad (21)$$

Le coefficient de correction à appliquer à la valeur mesurée de D sera dans ces conditions :

$$\epsilon = \frac{D_{ef}}{D} \quad (22)$$

Pour évaluer ϵ , il faut calculer la valeur de l'intégrale pour les conditions expérimentales utilisées : la source est placée en S dans le plan de section droite médian de la chambre et à une distance D de son axe. La chambre est un orthocylindre de rayon R et de demi-longueur H (fig. 5)

$$\int_v \frac{dV}{\delta^2} = 2 \pi \int_0^H \left[\text{Log} \frac{2 D^2}{D^2 - R^2 - x^2 + \sqrt{(D^2 - R^2 - x^2)^2 + 4 x^2 D^2}} \right] dx \quad (23)$$

En posant :

$$\frac{D}{R} = 1 \quad \frac{H}{R} = C \quad \frac{x}{R} = y \quad ,$$

l'intégrale s'écrit :

$$\int_v \frac{dV}{\delta^2} = 2 \pi R \int_0^C \left[\text{Log} \frac{2 l^2}{l^2 - 1 - y^2 + \sqrt{(l^2 - 1 - y^2)^2 + 4 y^2 l^2}} \right] dy \quad (24)$$

En intégrant par parties, on serait ramené à des intégrales elliptiques.

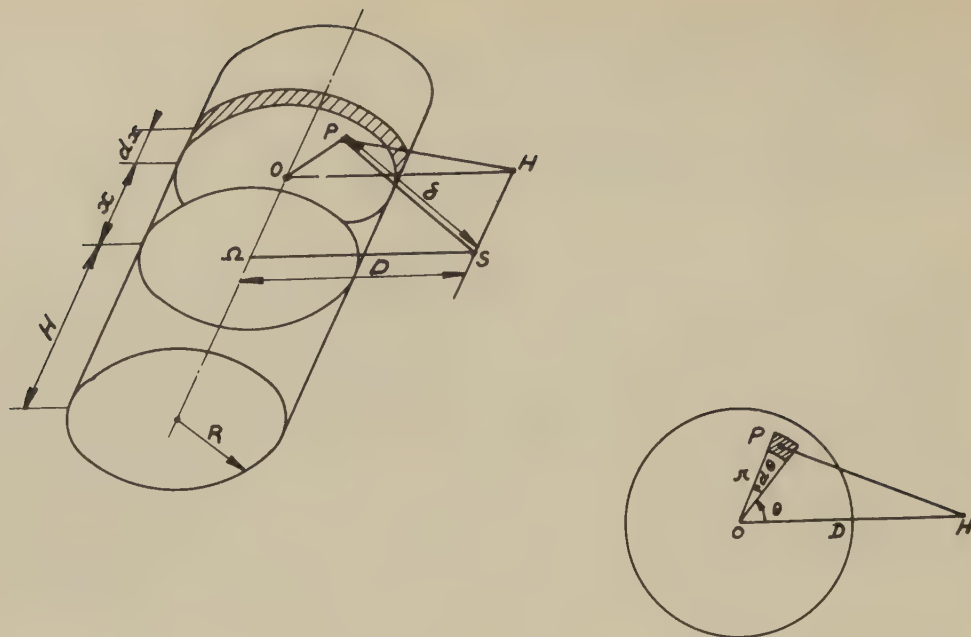


Fig.5 - Calcul de la correction de géométrie.

Les valeurs calculées de cette intégrale ⁽¹⁾ ont permis de tracer les courbes du facteur de correction ϵ en fonction de l pour quelques valeurs du paramètre C (fig.6).

On constate que c'est pour $C = 1,2$ que la correction est la plus faible. Plus précisément, pour une chambre dont la longueur est 1,2 fois le diamètre, le coefficient de correction ϵ reste égal à 1 à 0,3 % près pour toute distance source-axe de la chambre supérieure à 0,6 fois le diamètre de celle-ci.

Il est intéressant de comparer ces résultats avec ceux obtenus pour d'autres conditions géométriques : Clark et Brar ont calculé le coefficient de correction à appliquer dans le cas d'une source ponctuelle se déplaçant sur l'axe d'une chambre cylindrique [25]. Leurs résultats, traduits dans les mêmes notations que précédemment montrent que la correction est minimale pour $C = 0,8$ (fig.7). On voit ainsi que la forme optimale à donner à la chambre diffère suivant les conditions d'utilisation.

La loi de réciprocité, due à Mayneord [76] permet d'appliquer ces résultats à un autre cas. En effet, d'après cette loi, le débit de dose d'exposition moyen auquel est soumis un volume V irradié par une source ponctuelle d'activité A donnée, placée en un point P , est égal au débit de dose que produirait en P une source répartie uniformément dans le volume V et d'activité totale A . [77]. Par suite, le débit de dose d'exposition à une distance D du centre d'une source cylindrique homogène d'activité totale A , aura pour valeur :
$$\frac{A K}{D_{ef}^2}$$

où K est le coefficient K du radioélément considéré et où D_{ef} se déduit de D de la même manière que précédemment.

Cependant, intervient ici aussi une condition restrictive : ces résultats ne sont applicables que si l'autoabsorption et la diffusion des γ dans la source sont négligeables. Goosev et Al. ont étudié au contraire le cas où l'autoabsorption est importante [78]. Mais, leurs résultats ne permettent pas d'extrapoler avec précision les valeurs de D_{ef} dans le cas où l'autoabsorption n'est que de quelques %.

Résultats expérimentaux

Les premières mesures effectuées avec cet appareil et la source étalon de Radium datent de

(1) Les calculs ont été effectués sur machine Mercury par Mle Domerego, que nous tenons à remercier ici.

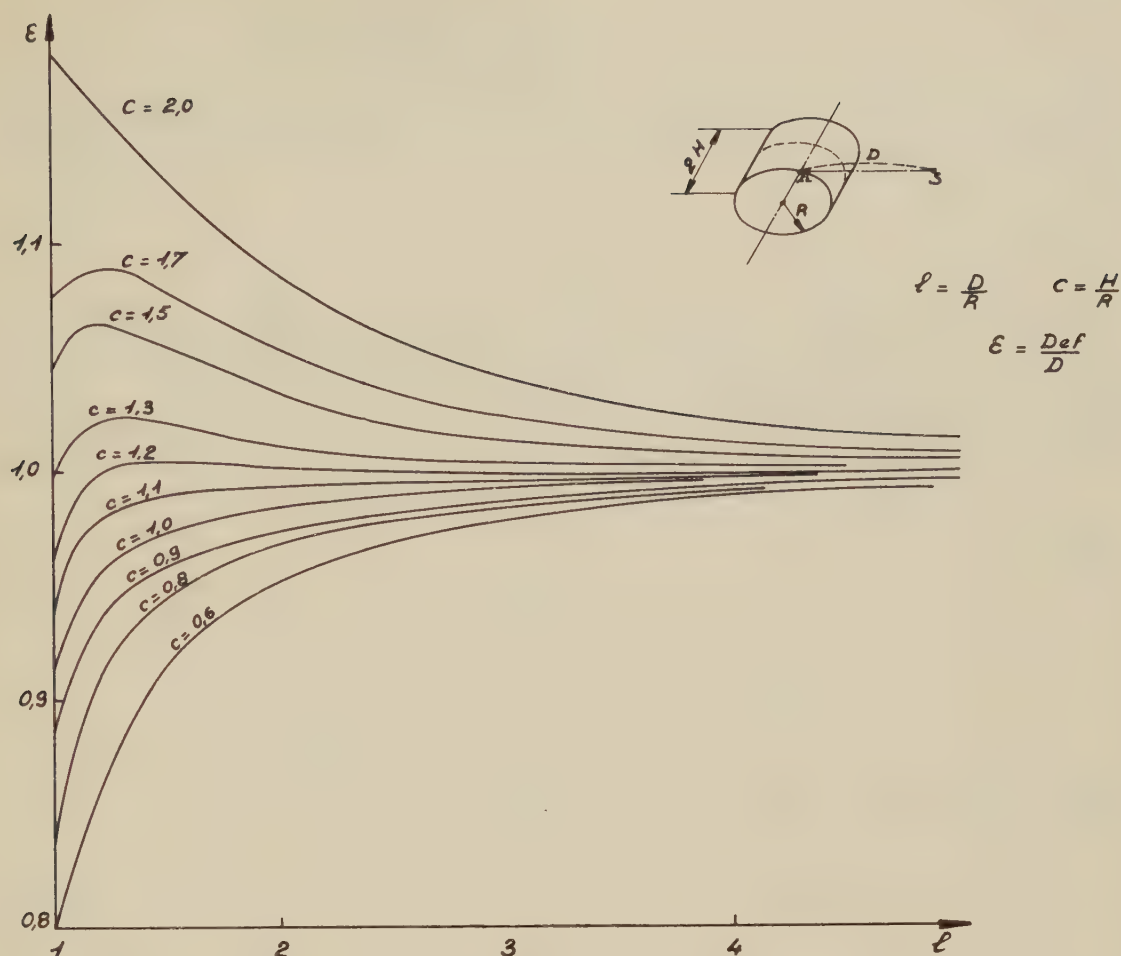


Fig.6 - Coefficient de correction de géométrie pour une source située dans le plan de section droite médian d'une chambre cylindrique.

Mai 1957 [26]. Nous avons trouvé alors pour le coefficient K du Radium filtré par 0,5 mm de Platine, une valeur de $8,1 \pm 2 \%$, résultat erroné du fait qu'à l'époque, nous n'avions pas pensé à tenir compte des trois premières corrections (autoabsorption, épaisseur efficace de Platine et hygrométrie, soit respectivement +1, +0,8 et +0,3 %). Tenant compte à posteriori de ces corrections, notre résultat se ramène à $8,27 \pm 2 \%$, en bon accord avec la valeur admise.

Nous avons repris récemment cette mesure avec la même source étalon en utilisant une chambre de volume déterminé avec une meilleure précision. La valeur obtenue était cette fois : $8,20 \pm 1,2 \%$ (en supposant que les erreurs sur les différents facteurs entrant dans le calcul de K aient une distribution aléatoire).

Pour déterminer l'activité d'une source d'un autre radioélément, on opère le plus souvent par comparaison avec la source de Radium.

Dans ce qui précède, nous avons supposé la source de dimensions négligeables vis-à-vis de la distance source-axe de la chambre. Si cette condition est peu restrictive dans le cas de la source

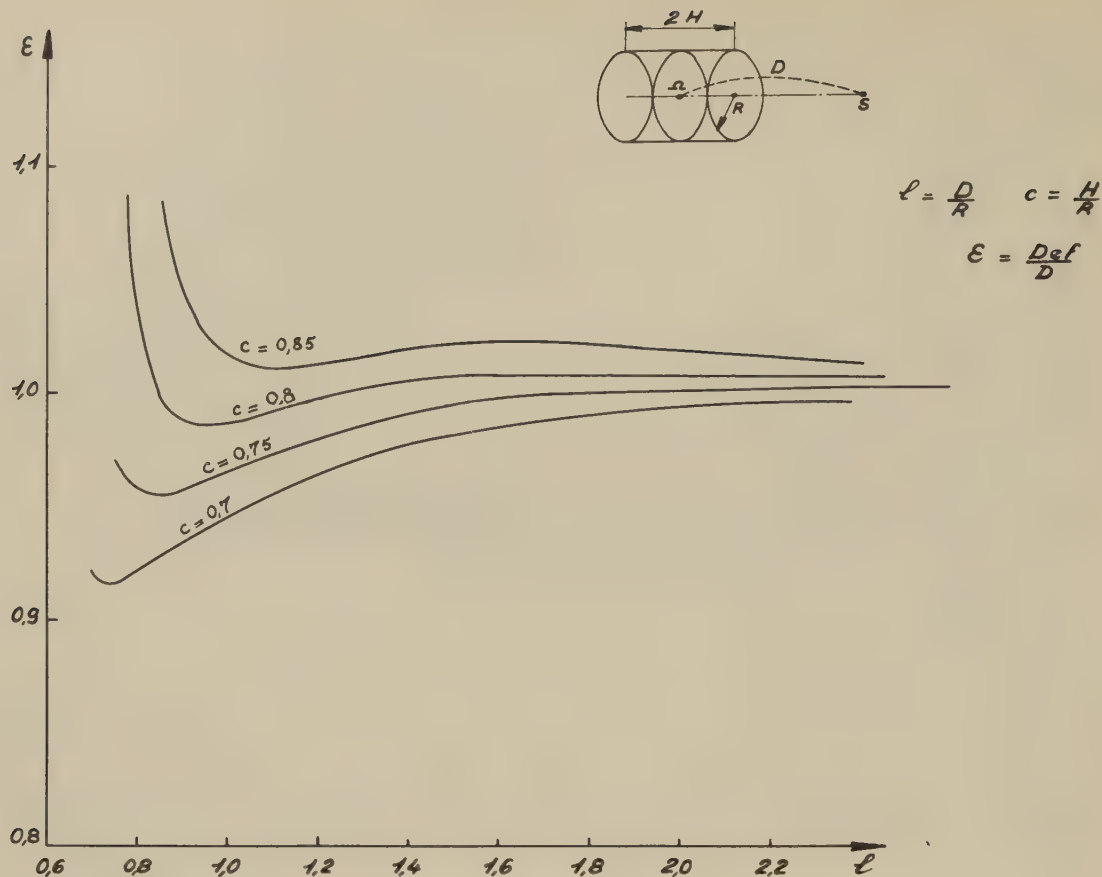


Fig. 7 - Coefficient de correction de géométrie pour une source placée sur l'axe d'une chambre cylindrique.

de Radium, il n'en est plus ainsi dans la plupart des autres cas. En particulier, s'il s'agit de mesurer l'activité d'une solution de quelques cm^3 contenue dans une ampoule, et si on veut éviter d'appliquer un nouveau coefficient de correction difficilement calculable, il faudra placer la source à une distance minimum de 25 cm de la chambre. Le seuil de mesure du dispositif électrométrique étant de 10^{-14} A, la limite inférieure des activités mesurables par cette méthode est de 0,25 mc pour le ^{60}Co , et de 1,5 mc pour l' ^{131}I . Ce seuil ne permet pas en particulier la mesure des solutions destinées aux intercomparaisons entre différents laboratoires ; en effet, ces solutions ont en général une activité spécifique de l'ordre de 20 $\mu\text{c/cc}$ et sont le plus souvent délivrées dans des ampoules contenant 5 cm^3 de solution.

Cet appareil est par contre bien adapté à la mesure de l'activité efficace des sources solides devant servir à l'étalonnage de dispositifs de mesures relatives, tels que les chambres à puits γ .

CHAPITRE III

MESURES RELATIVES D'ACTIVITÉS PAR CHAMBRES D'IONISATION GAMMA

Chambre "grand condensateur"

Depuis les débuts de la Radioactivité, les chambres d'ionisation gamma ont été utilisées pour les mesures de sources de Radium. La chambre de Curie-Debierne [27], dénommée "grand condensateur" est encore utilisée dans certains laboratoires de métrologie. Cette chambre cylindrique, de grand diamètre est recouverte d'une feuille de Plomb de 5 ou 10 mm d'épaisseur. La source est placée sur ce blindage, au centre. Les mesures d'activité se font par comparaison avec une source étalon placée dans les mêmes conditions (fig. 8).

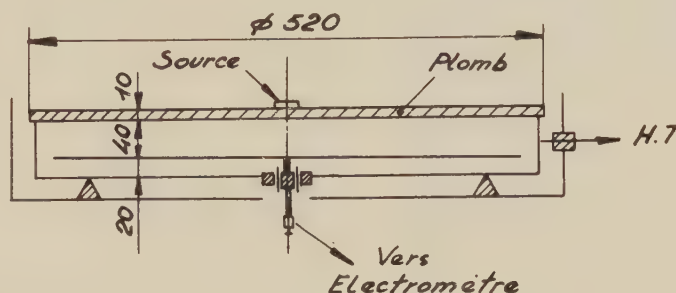


Fig.8 - Chambre d'ionisation dite "grand condensateur".

La position de la source n'est pas critique : la réponse de la chambre n'est pas affectée par un décentrement de la source de l'ordre du cm ; par contre, un déplacement axial de la source au voisinage du blindage se traduit par une diminution du courant d'ionisation de l'ordre de 0,3 % par mm.

L'écran de plomb permet de sélectionner les γ d'énergie élevée, ce qui a pour effet d'augmenter l'énergie efficace des γ qui parviennent au volume sensible de la chambre. De ce fait, il n'y a pas en général à tenir compte des différences d'autoabsorption entre la source inconnue et la source étalon.

La sensibilité pour le Radium est de l'ordre de 10^{-11} a/mc. Pour gagner un facteur 2 sur la sensibilité, W. Sebaoun a réalisé, sur le même principe une chambre étanche à remplissage d'Argon [28].

Ces chambres peuvent servir également à mesurer l'activité de sources d'autres radioéléments. La mesure s'exprime alors en "mg équivalent Radium". Etalonner la chambre pour un radioélément revient alors à déterminer l'activité de la source du radioélément donnant le même courant que 1 mg de Radium [29].

Depuis, dans certains pays, on utilise la notion de mg équivalent Radium pour désigner l'activité de la source qui donnerait le même débit de dose d'exposition à une certaine distance qu'un milligramme de Radium [30]. La différence entre les deux acceptions est donc dans l'instrument de mesure, dans un cas, grand condensateur, dans l'autre chambre air-équivalente. Dans le deuxième cas, une source d'un radioélément S, de x mg équivalent Radium a une activité exprimée en mc de :

$$x = \frac{K_{Ra}}{K_s}$$

Si le grand condensateur est un instrument parfaitement adapté à la mesure des sources de Radium, son application à la mesure d'autres radioéléments est assez limitée : sa sensibilité est peu élevée et le volume d'égale sensibilité à 1 % (représentant le volume dans lequel on peut déposer une source ponctuelle sans amener une variation de courant supérieure à 1 %) est un cylindre de 3 mm de hauteur. Aussi, serait-il difficile de mesurer avec cet appareil des sources de formes diverses, en particulier des solutions. Il est probable qu'on pourrait améliorer considérablement cette caractéristique en plaçant la source entre deux chambres de ce type identiques, connectées en parallèle au dispositif électrométrique.

Chambre à puits gamma

Certains auteurs ont cherché à obtenir de meilleures performances en utilisant le rayonnement émis en 4π par la source, celle-ci étant placée à l'intérieur d'une chambre sphérique ou cylindrique.

Dans un ouvrage paru en 1935, Mme P. Curie avait déjà décrit une chambre à puits qui avait servi à mesurer la période du dépôt actif d'une source de Radon enfermée dans un tube scellé [31] (fig. 9).

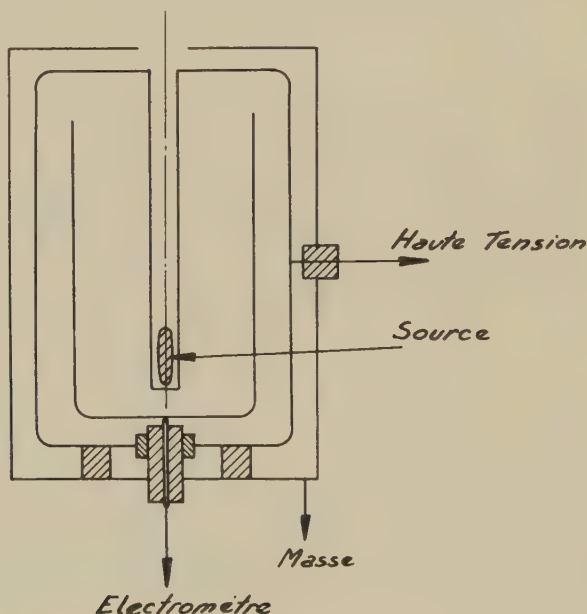


Fig.9 - Chambre à puits (de Madame P. Curie)

Les chambres cylindriques à puits sont maintenant utilisées -sous le nom de chambres $4\pi\gamma$ - dans la plupart des laboratoires de métrologie. Certains modèles sont remplis d'air à la pression atmosphérique, d'autres d'Argon sous pression [32 à 35].

Une chambre développée par Perry, adaptée aux mesures en β et γ a été réalisée en série [36, 37]. Dans le même esprit, nous avons réalisé une chambre β , γ et une chambre à puits [38, 39].

Les caractéristiques de ces chambres sont approximativement calculables à partir de leurs paramètres géométriques, ce qui permet de construire des chambres adaptées à différentes gammes d'activité ou à différentes formes de sources [40].

Influence des paramètres géométriques d'une chambre à puits sur sa réponse

La chambre réalisée est constituée essentiellement d'un système de trois électrodes cylin-

driques concentriques, l'électrode collectrice étant située entre deux électrodes haute-tension. L'ensemble, enfermé dans un blindage étanche, est rempli d'Argon sous une pression qui, suivant les modèles réalisés varie de 1 à 20 Kg/cm².

Le blindage cylindrique intérieur a la forme d'un puits qui permet d'introduire au centre de la chambre la source à mesurer.

Le diamètre du puits est subordonné à celui des plus grosses sources à mesurer. Il reste à choisir les autres paramètres géométriques : longueur de la chambre et distance interélectrode.

a) Longueur de la chambre

Deux considérations interviennent dans sa détermination.

Il faut qu'un déplacement axial de la source affecte le moins possible le courant d'ionisation. Cette condition sera d'autant mieux satisfaite que la longueur de la chambre sera plus grande. Mais augmenter cette longueur au-delà d'une certaine limite n'améliore guère la sensibilité et complique la réalisation mécanique de la chambre.

Pour essayer de déterminer la longueur optimale on peut chercher la loi de variation de la sensibilité de la chambre en fonction de sa longueur pour une source placée en son centre.

Pour faire intervenir seulement les paramètres géométriques, on peut caractériser la source de la manière suivante : soit i_0 le courant qu'elle produirait dans une chambre d'ionisation de 1 cm³, distante de 1 cm : cette chambre est supposée de plus avoir des parois de même nature et même épaisseur que celles de la chambre à puits, et le même gaz de remplissage à la même pression.

Si la distance interélectrode a de la chambre à puits est petite par rapport au rayon R de l'électrode collectrice, le courant d'ionisation donné par une chambre de demi-longueur l aura sensiblement pour valeur (fig.10) :

$$I = \int_{-l}^{+l} i_0 \times 4 \pi R a \frac{dz}{z^2 + R^2} \text{ soit :}$$

$$I = 8 \pi a i_0 \text{ Arc tg } \frac{1}{R} \quad (25)$$

Pour une chambre de longueur infinie, le courant serait :

$$I = 4 \pi^2 a i_0$$

En traçant la courbe de $\frac{I}{I_\infty}$ en fonction de $\frac{1}{R}$, on voit que pour une chambre dont le rapport de la longueur au diamètre est de 3, la sensibilité est déjà 79 % de celle qu'aurait une chambre de longueur infinie (fig.11). C'est cette valeur de $\frac{1}{R} = 3$ que nous avons adoptée car au-delà, la courbe de sensibilité relative n'est plus que lentement croissante.

b) Réponse de la chambre en fonction du déplacement axial d'une source ponctuelle

Une source placée en un point P de l'axe, à une distance d du centre de la chambre donne un courant d'ionisation :

$$I_p = \int_{-1}^{+1} i_0 4 \pi R a \frac{dz}{(z - d)^2 + R^2} \text{ soit :}$$

$$I_p = 4 \pi a i_0 \left[\text{Arc tg } \frac{1 - d}{R} + \text{Arc tg } \frac{1 + d}{R} \right] \quad (26)$$

Si I_s est le courant qu'on aurait obtenu pour la source placée au centre ($d = 0$), le rapport $\frac{I_p}{I_s}$ donne la variation relative de sensibilité lorsque la source se déplace sur l'axe (fig.12 a).

On voit que la sensibilité de la chambre reste à 1 % près la même que pour une source centrée si d reste inférieur à 0,65 R . Pour les dimensions adoptées ($\frac{1}{R} = 3$ $R = 5$ cm) cette valeur

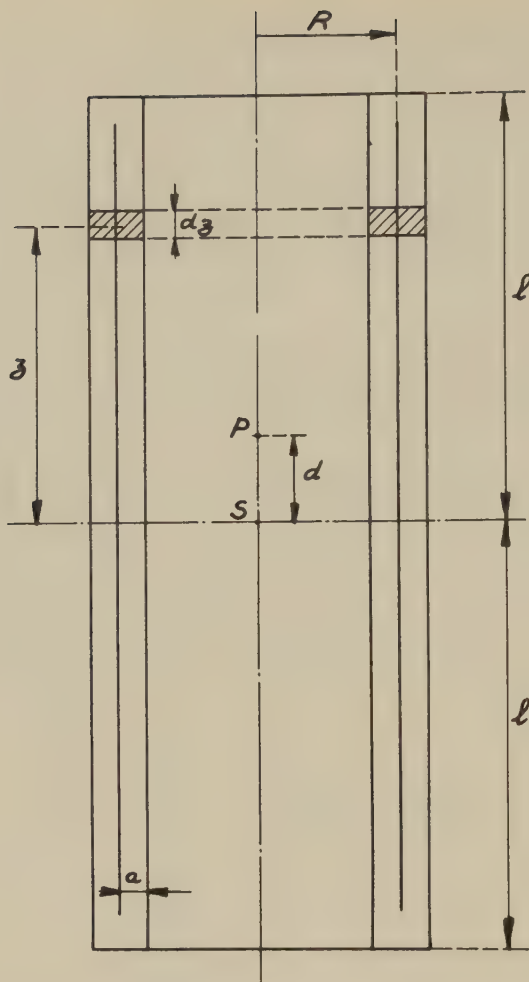


Fig. 10 - Chambre à puits. Calcul de l'influence de la position de la source sur la réponse au courant de la chambre.

limite de d serait de 3 cm. Ce domaine d'égale sensibilité peut suffire dans beaucoup de cas ; cependant, il serait souhaitable de l'accroître pour la mesure des flacons de solutions.

c) Recherche des conditions géométriques permettant d'accroître la zone d'égale sensibilité

Pour accroître le domaine d'égale sensibilité axiale, nous avons essayé de modifier la forme des électrodes, étant guidé en cela par une analyse qualitative des phénomènes.

D'après ce qui précède, lorsque la distance d entre le centre de la chambre et une source se déplaçant sur l'axe croît, le courant d'ionisation décroît. Ce résultat est prévisible qualitativement puisque lors de ce déplacement, l'angle solide sous lequel la source voit la chambre décroît.

Si l'on considère alors deux chambres dont l'axe et le centre coïncident, mais dont la longueur et la distance interélectrode diffèrent, il doit exister une relation entre leurs paramètres géométriques telle que la différence de leurs courants d'ionisation soit pratiquement indépendante de la position de la source sur l'axe.

Pour obtenir la caractéristique recherchée, on pourrait donc utiliser deux chambres concentriques connectées en montage différentiel. Il est plus simple cependant de réaliser une seule chambre, différence des deux chambres considérées [40], ce qui revient à construire une chambre dans laquelle la distance interélectrode est plus petite dans la région médiane qu'aux extrémités (fig. 13).

En calculant comme précédemment le courant I_p donné par la chambre ainsi modifiée, et en écrivant que les premières dérivées de I_p par rapport à d sont nulles, on obtient une relation entre les paramètres géométriques de la chambre :

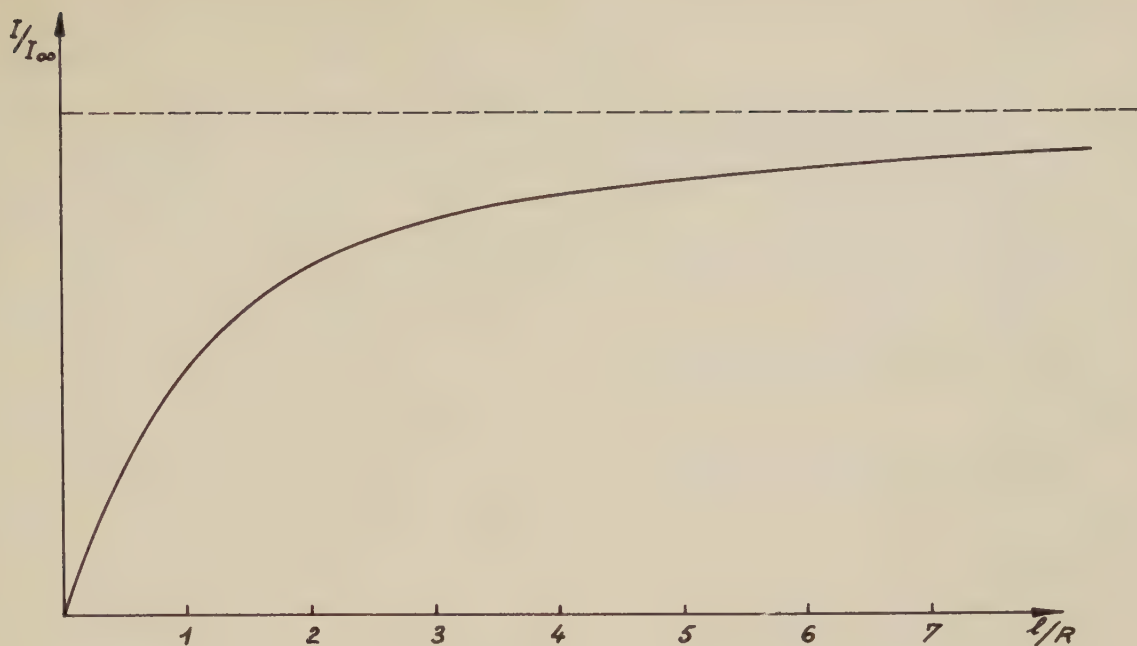


Fig. 11 - Variation relative de sensibilité d'une chambre en fonction de sa longueur.

$$\frac{a}{a-b} = \frac{h}{l} \frac{(R^2 + l^2)^2}{(R^2 + h^2)^2} \quad (27)$$

Les courbes donnant la variation de $\frac{h}{l}$ en fonction de $\frac{1}{R}$ pour quelques valeurs du rapport $\frac{a}{b}$ traduisent ce résultat (fig. 14).

Si l'on choisit par exemple pour une chambre les valeurs suivantes des paramètres : $\frac{1}{R} = 3,1$, $\frac{a}{b} = 1,25$, $R = 5$ cm, on déduit des courbes qu'il faudra prendre $\frac{h}{l} = 0,5$.

En traçant pour ces valeurs la courbe de variation de $\frac{l}{l_s}$ en fonction de d , on vérifie que la zone d'égale sensibilité axiale a été accrue : la réponse de la chambre est cette fois constante à 1 % près lorsque la source se déplace de 8,5 cm de part et d'autre du centre (fig. 12 b).

Expérimentalement, on vérifie très sensiblement la courbe de réponse calculée. En déplaçant également une source ponctuelle dans un plan de section droite de la chambre, on s'aperçoit que là encore, le dispositif adopté a permis d'améliorer la constance de la réponse de la chambre.

Ainsi, la zone d'égale sensibilité a été accrue dans toutes les directions, ce qui peut permettre de mesurer des sources de formes diverses, par exemple des flacons de solution, sans avoir à faire intervenir de correction de géométrie.

Courbe de sensibilité. Etalonnage d'une chambre

a) Calcul de la sensibilité pour un radioélément

Pour entreprendre ce calcul de sensibilité, il faut d'abord savoir s'il y a lieu de tenir compte d'un coefficient B (pouvoir d'arrêt électronique relatif de la paroi par rapport au gaz vis-à-vis des électrons secondaires). La méthode la plus simple consiste à tracer pour une source donnée, et pour la chambre considérée (de distance interélectrode 1 cm) la courbe de $\frac{I_s}{P}$ en fonction de P , pression de remplissage.

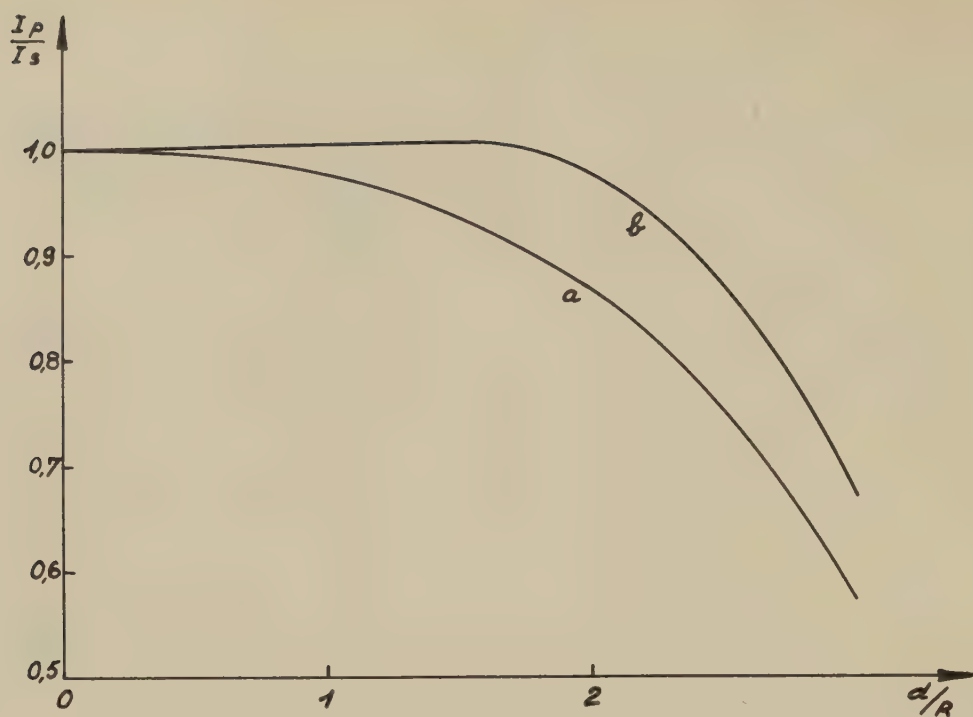


Fig.12 - Variation relative de sensibilité lorsqu'une source se déplace sur l'axe à partir du centre de la chambre ; a) pour une chambre à distance interélectrode constante ; b) pour une chambre à zone d'égale sensibilité accrue.

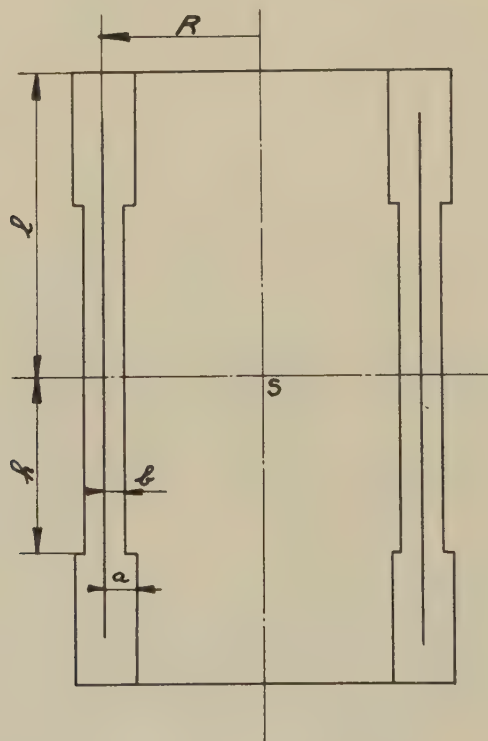


Fig.13 - Calcul des paramètres géométriques permettant d'améliorer la zone d'égale sensibilité.

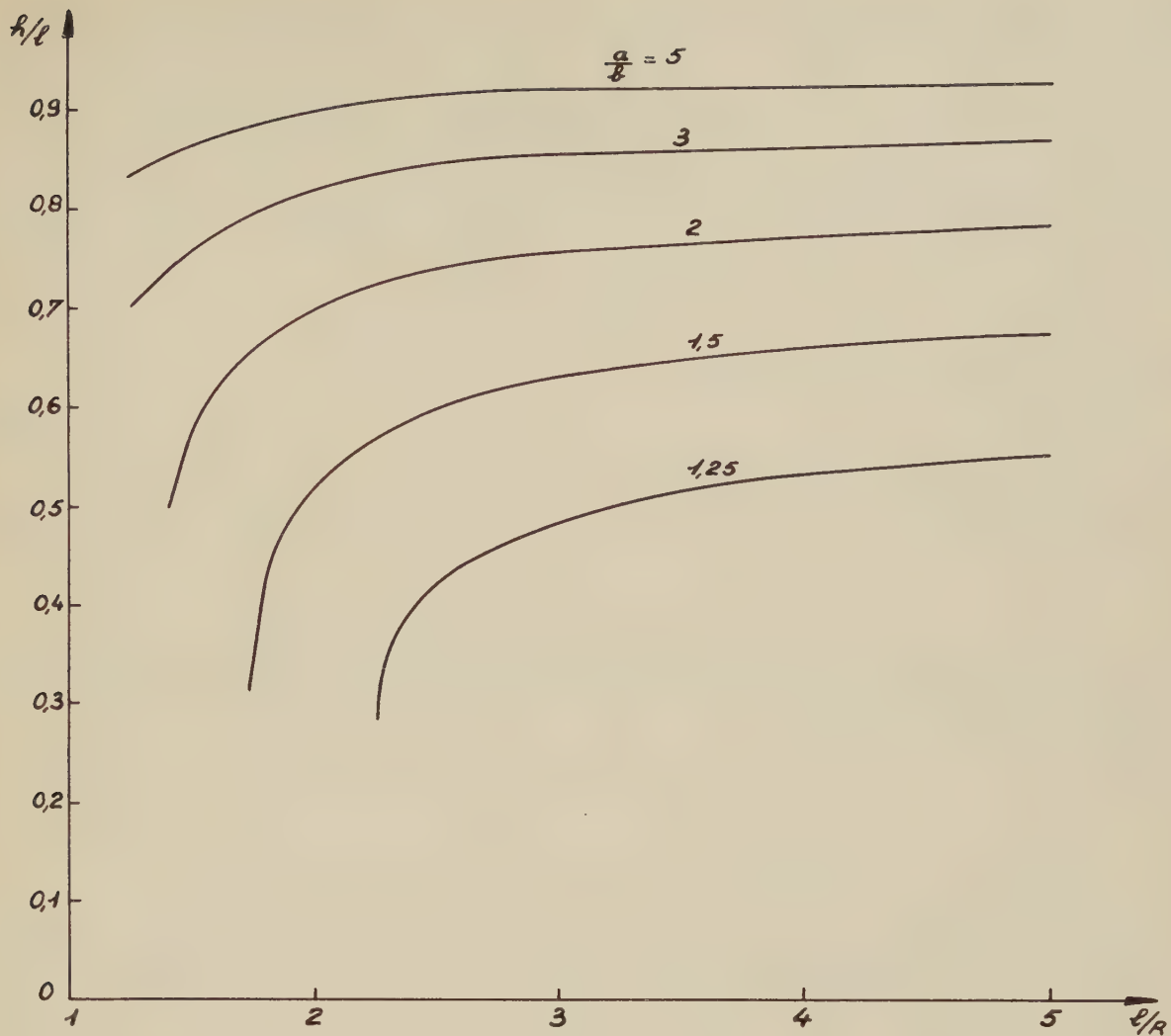


Fig.14 - Relation entre les paramètres géométriques d'une chambre à zone d'égale sensibilité accrue.

Nous avons trouvé expérimentalement que pour des énergies γ supérieures à 0,4 MeV, et pour des pressions supérieures à 4 kg/cm², ces courbes sont des horizontales. Donc, dans ce domaine, tout se passe comme si les électrons secondaires contribuant à l'ionisation du volume utile de la chambre étaient tous produits dans le gaz contenu (à l'inverse des chambres-cavités où tous les électrons secondaires sont supposés provenir des parois).

Il n'y a pas lieu dans ces conditions d'introduire un coefficient B, et d'après les notations précédentes, le courant donné par la chambre peut s'écrire :

$$I_s = 8 \pi a i_0 \left[\text{Arc tg } \frac{1}{R} - \frac{a-b}{a} \text{Arc tg } \frac{h}{R} \right] \quad (28)$$

Le calcul se ramène à celui de i_0 , courant produit par la source dans une chambre fictive de 1 cm³ placée à 1 cm de la source, ayant la même pression de remplissage que la chambre à puits et la même épaisseur de paroi.

i_0 lui-même est calculable à partir du coefficient K du radioélément considéré. La dose absorbée par gramme d'Argon dans la chambre fictive définie précédemment est :

$$D = 87,7 \frac{K}{3.600} \frac{\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_A}{\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{air}}} \quad (29)$$

Dans le domaine d'énergie γ considéré, le rapport des coefficients massiques d'absorption vraie

$$\frac{\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_A}{\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{air}}}$$

est sensiblement constant et égal à 0,91.

Par ailleurs :

$$D = J W_A \quad (30)$$

où : J : nombre de paires d'ions créés par gramme d'Argon

W_A : énergie nécessaire pour produire une paire d'ions dans l'Argon, soit $4,22 \cdot 10^{-11}$ ergs.

Enfin i_0 se déduit de J par :

$$i_0 = e^{-\mu_{ef} x} \times 1,6 \cdot 10^{-19} J d \quad \text{ampère} \quad (31)$$

où x est l'épaisseur de la paroi en cm, μ_{ef} le coefficient linéaire d'absorption efficace de la paroi vis-à-vis des γ dans les conditions expérimentales considérées, et d la masse spécifique de l'Argon à la pression considérée.

Des équations (28) à (31) on déduit I_s , courant donné par la chambre pour une source de 1 millicurie.

$$I_s = 2,11 \cdot 10^{-9} a \left[\text{Arc tg } \frac{1}{R} - \frac{b}{a} \text{Arc tg } \frac{h}{R} \right] d e^{-\mu_{ef} x} \cdot K \quad \text{ampère} \quad (32)$$

Cette équation montre en particulier, que pour une chambre donnée, dans le domaine d'énergies considéré, le rapport $\frac{I_s}{K e^{-\mu_{ef} x}}$ doit rester constant. Cette équation permet également de prévoir l'ordre de grandeur de la sensibilité pour un radioélément.

Par exemple, pour une chambre remplie sous 12 kg/cm^2 et dont les paramètres géométriques sont :

$$a = 1 \text{ cm} \quad \frac{1}{R} = 3,1 \quad \frac{a}{b} = 1,25 \quad \frac{h}{1} = 0,5$$

on trouve expérimentalement que la sensibilité pour le ^{60}Co est de $4,7 \cdot 10^{-10} \text{ a/mc}$ alors que la valeur calculée est de $4,6 \cdot 10^{-10} \text{ a/mc}$ (étant donné les approximations faites, il est probable que des erreurs se compensent pour obtenir un si bon accord).

b) Étalonnage

On déduit en général l'étalonnage pour un radioélément de la valeur du courant d'ionisation I donné par une solution étalon d'activité A connue. Cette solution, enfermée dans une ampoule standard, a été mesurée au préalable par une des techniques de mesure absolue.

L'étalonnage $S = \frac{I}{A}$ a/mc obtenu permet seulement de déduire l'activité vraie de solutions ou sources présentant les mêmes caractéristiques d'autoabsorption que la solution étalon.

En fait, la solution étalon a une activité efficace $A' = A E_b$, où E_b coefficient d'autoabsorption pour l'ampoule considérée sera calculé plus loin.

On utilise donc comme étalonnage $S' = \frac{I}{A}$ a/mc pour mesurer l'activité efficace de sources solides telles que celles utilisées en gammagraphie.

Pour vérifier la cohérence des étalonnages, il est intéressant, pour une chambre donnée de tracer la courbe de $\frac{S'}{K}$ en fonction de l'énergie efficace γ , ce rapport devant rester sensiblement constant à partir de 0,5 MeV.

Cette courbe a été tracée pour une chambre remplie d'Argon sous une pression de 20 Kg/cm² (fig. 15). Les valeurs de K utilisées pour construire cette courbe sont celles que nous croyons les plus probables :

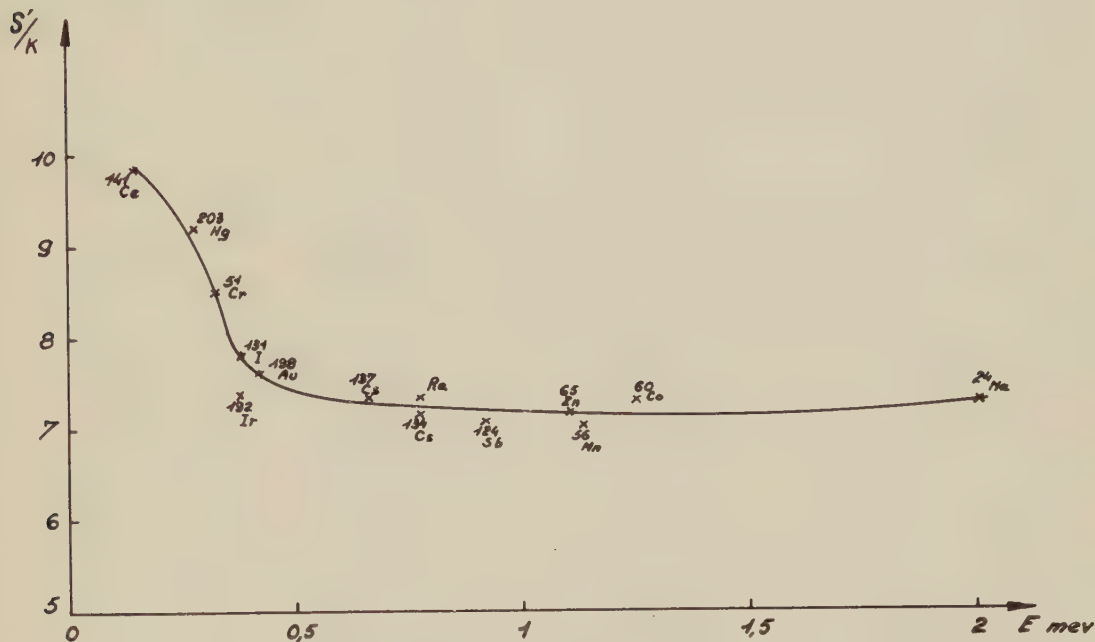


Fig. 15 - Courbe de réponse d'une chambre à puits en fonction de l'énergie γ .

²⁴ Na	18,3	¹³⁷ Cs	3,35
⁵¹ Cr	0,18	¹⁴¹ Ce	0,42
⁵⁶ Mn	8,80		
⁶⁰ Co	13	¹⁹² Ir	4,85
⁶⁵ Zn	3,0	¹⁹⁸ Au	2,30
¹²⁴ Sb	9,8	²⁰³ Hg	1,20
¹³¹ I	2,20	Ra (0,5 mm Pt) 8,25	
¹³⁴ Cs	9,32		

Les énergies efficaces ont été calculées sans tenir compte de l'effet d'absorption de la paroi de la chambre. En fait, dans le cas d'un radioélément émettant des γ d'énergies diverses, la paroi joue un rôle de filtration qui a pour effet d'augmenter l'énergie efficace γ .

C'est pourquoi le point correspondant à ¹⁹²Ir par exemple devrait être décalé vers les énergies plus élevées, ce qui le ramènerait d'ailleurs sur la courbe.

Cet effet de filtration peut avoir lieu dans la source elle-même lorsque l'autoabsorption est importante, en particulier dans le cas des sources solides.

Pour de telles sources, l'étalonnage S', déduit de la mesure d'une solution étalon et de son coefficient d'autoabsorption, n'est plus applicable en toute rigueur. Il serait donc préférable pour tous les radioéléments émettant des γ de différentes énergies d'opérer comme pour le Radium : effectuer l'étalonnage et la mesure dans des conditions de filtration telles que seuls les γ les plus énergiques contribuent à l'ionisation.

Réalisation de chambres adaptées à différentes gammes d'activité

Pour une chambre de géométrie donnée, il y a une valeur limite du courant d'ionisation au delà de laquelle on n'atteint plus, pour la valeur de la haute-tension appliquée le courant de saturation. Cette valeur limite est en gros proportionnelle à $\frac{X}{p}$, rapport du champ électrique interélectrode à la pression de remplissage.

Pour que cette chambre permette de mesurer des sources de haute activité, sa pression de remplissage devra donc être faible et sa distance interélectrode suffisamment petite. En ce qui concerne la pression, il est préférable de la maintenir au-dessus de la pression atmosphérique, car le dégazage des électrodes ou une très faible introduction d'air par des fuites non décelables risqueraient de modifier progressivement la composition du gaz de remplissage et de ce fait, abaisser le seuil au-delà duquel on n'atteint plus la saturation.

Pour couvrir une gamme de mesure étendue, nous avons été amenés à réaliser des chambres de différents types :

Type	Pression d'Argon	Distance interélectrode	Sensibilité pour le ^{60}Co (ordre de grandeur)	Utilisation	
				gamme d'activités	Protection
A	20 Kg/cm ²	8 mm	10 ⁻⁹ A/mc	0,2 µc à 10 mc	5cm de plomb
B	3 Kg/cm ²	10 mm	10 ⁻¹⁰ A/mc	1 mc à 500 mc	Enceinte de 10 cm de Plomb
C	1,2 Kg/cm ²	2 mm	10 ⁻¹¹ A/mc	100 mc à 200 curies	Cellule de télémanipulation pour hautes activités

Par ailleurs, un modèle rempli à 12 kg/cm² et prévu pour les sources comprises entre 0,2 µc et 100 mc a été réalisée pour les utilisateurs médicaux (fig. 16 et 17).

La chambre C est destinée entre autres à la mesure de barreaux de ^{60}Co de 10 cm de longueur et de 1 cm de diamètre. La distance interélectrode est de 2 mm dans la partie centrale et de 3 mm aux extrémités. Le préamplificateur associé est protégé du rayonnement direct par une épaisseur de 7 cm de Plomb.

La zone d'égale sensibilité axiale s'étend à 9 cm de part et d'autre du centre de la chambre ; les barreaux de ^{60}Co sont donc largement contenus dans cette zone et il n'est pas nécessaire d'effectuer de correction de géométrie.

En fait, chacune de ces chambres n'est pas utilisée dans tout son domaine de linéarité et ce sont des considérations de protection qui assignent les valeurs limites d'activité à ne pas dépasser.

Si la chambre du type A peut être étalonnée directement à partir des solutions étalons, il n'en est pas de même des deux autres. Leurs gammes de recouvrement peuvent permettre d'effectuer des étalonnages "en cascade", mais on risque d'accumuler ainsi les erreurs dues aux défauts de linéarité de chacune des chaînes de mesure.

Il est préférable de mesurer avec la chambre-cavité en graphite l'activité efficace d'une source solide et de s'en servir ensuite comme source de référence pour étalonner une des chambres.

L'ensemble des trois chambres A, B et C a permis d'effectuer en 5 ans environ 4.000 mesures d'activité sur une vingtaine de radioéléments.

Chambre à puits pour mesure des émetteurs β par le rayonnement de freinage associé

Pour mesurer l'activité des solutions de ^{32}P à usage médical (d'activité spécifique de l'ordre de 2 mc/cc), il est commode d'étalonner un appareil sensible au rayonnement de freinage émis par la solution. Toutes les autres méthodes impliquent l'ouverture du flacon et le prélèvement d'une partie de la solution, d'où risque de contamination dangereuse étant donné l'activité spécifique élevée.

Les solutions sont délivrées dans des flacons standards de 2,5 cm de diamètre extérieur. Le rayonnement de freinage prend naissance non seulement dans la solution, mais aussi dans le verre

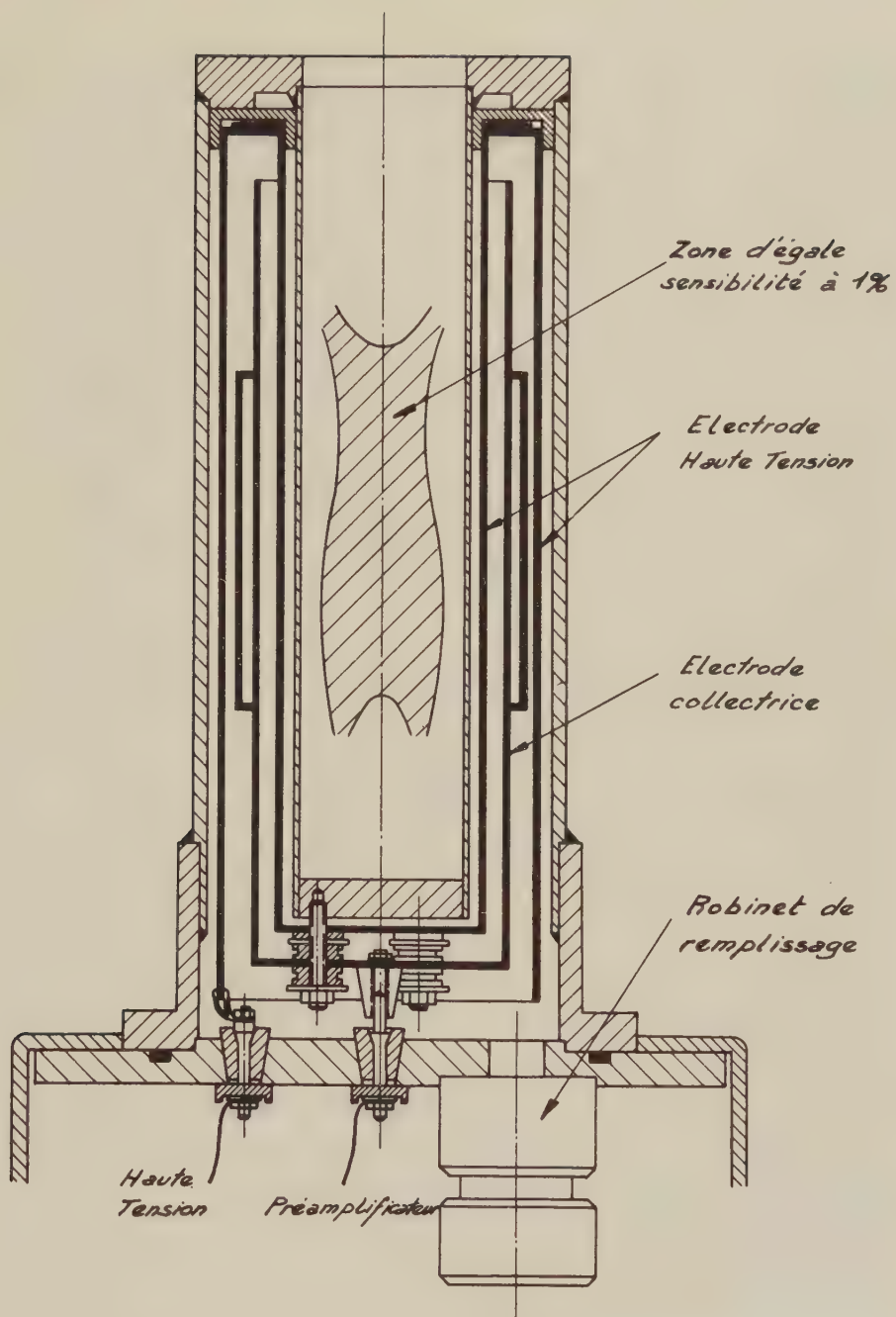


Fig.16 - Chambre à puits.

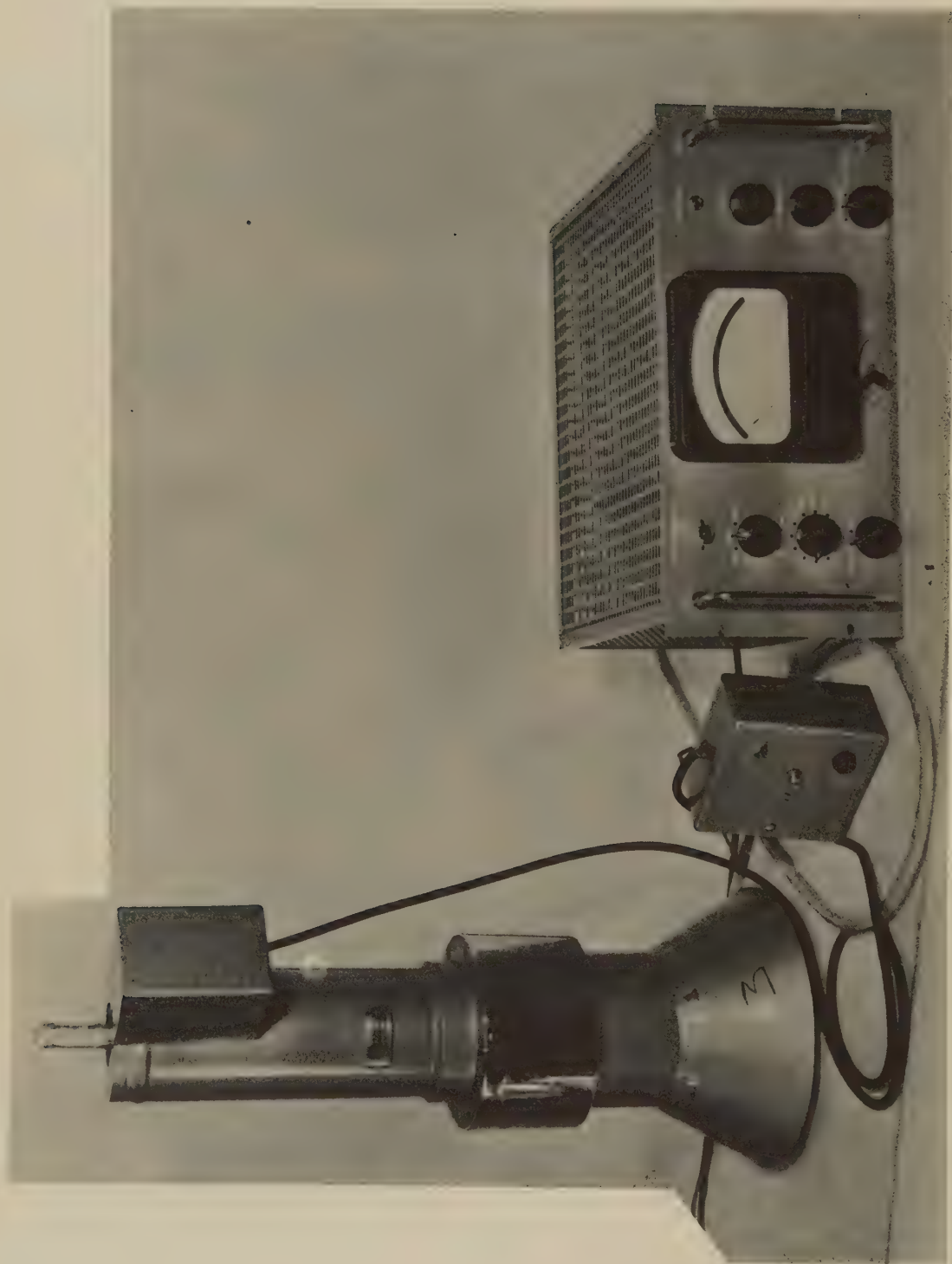


Fig. 17 - Vue de la chambre associée à un amplificateur à courant continu et dispositif d'introduction de sources à distance.

du flacon. Les numeros atomiques moyens de l'eau et du verre étant différents, le nombre de rayons X émis dépend non seulement de l'activité totale de la solution mesurée, mais aussi du niveau du liquide dans le flacon. Aussi doit-on tracer la courbe d'étalonnage du détecteur en fonction de la quantité de liquide contenue dans le flacon.

Pour filtrer le moins possible le rayonnement X, il y a intérêt à utiliser un détecteur équipé d'une fenêtre mince en substance de faible numéro atomique. Les chambres à puits décrites précédemment sont réalisées en acier et laiton et sont donc mal adaptées à cette mesure.

Pour améliorer la sensibilité, nous avons réalisé une chambre à puits dont les parois sont en alliage Aluminium-Magnésium, ce qui pose des problèmes technologiques pour obtenir une parfaite étanchéité [41]. Cette chambre est remplie d'Argon sous une pression de 10 Kg/cm². Pour compenser les variations éventuelles d'épaisseur de verre des flacons standards utilisés, la paroi du puits a été recouverte d'une couche de verre de 2 mm d'épaisseur (fig.18).

La sensibilité pour le ³²P en solution est d'environ 5.10⁻¹² a/mc. Le courant de mouvement propre étant équivalent à une source de 10 µc de ³²P, le seuil de mesure est de 100 µc.

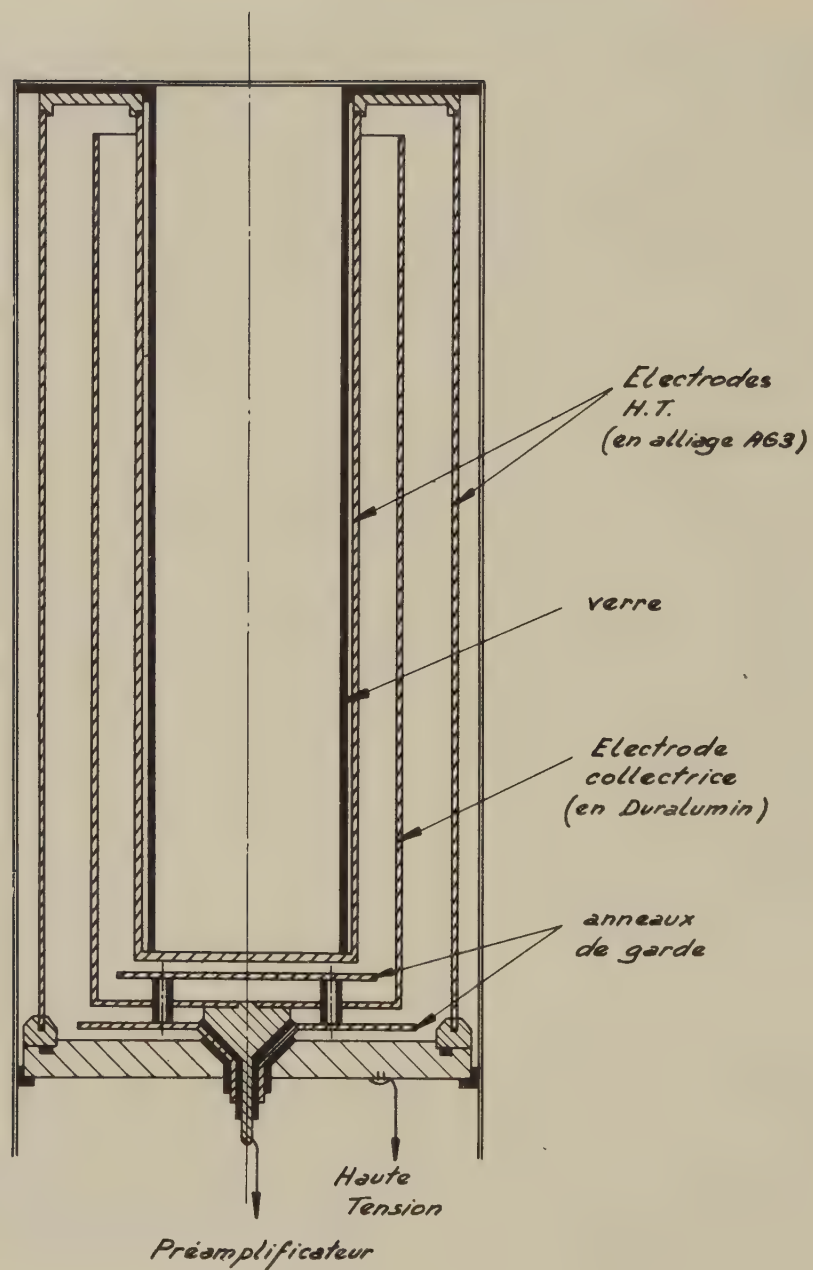


Fig.18 - Chambre à puits pour mesure des émetteurs γ par le rayonnement de freinage.

CHAPITRE IV

CHAMBRE-CAVITÉ A HAUTE EFFICACITÉ - APPLICATION A LA DÉTERMINATION DU COEFFICIENT K DE QUELQUES RADIOÉLÉMENTS

Une chambre sphérique à extrapolation destinée à des mesures d'activité a été développée en 1940 par T.N. White et Al. [42]. La source est placée au centre d'électrodes sphériques concentriques de diamètres variables. De l'énergie d'ionisation dépensée par le rayonnement dans la couche d'air entre électrodes, on déduit, en tenant compte du coefficient d'absorption vraie des γ dans la paroi, l'activité de la source.

Cette chambre a permis à W. Gross et Al. [43] de mesurer l'activité d'une source ponctuelle d' ^{198}Au , et d'obtenir une valeur en bon accord avec une détermination par une méthode classique.

La chambre que nous avons réalisée dans le même but bénéficie elle aussi d'une bonne efficacité aux γ émis par la source. C'est une chambre à puits, remplie d'air et à parois de graphite [44]. Sa sensibilité pour une source placée au centre n'étant pas calculable avec précision, elle ne permet pas comme la chambre sphérique des déterminations directes d'activité, mais seulement des mesures indirectes, par comparaison avec une source étalon de Radium. Le seuil d'activité mesurable est nettement moins élevé que pour une chambre-cavité avec source extérieure.

Description de l'appareil et principe

L'électrode collectrice cylindrique est enfermée dans l'électrode haute-tension annulaire et est soutenue par trois passages isolants comportant des anneaux de garde. Un de ces passages permet la connexion à l'électromètre par l'intermédiaire d'une canalisation dans laquelle on fait le vide.

Pour des raisons de difficulté de réalisation mécanique, la chambre est de petites dimensions (diamètre extérieur 88, longueur extérieure 158).

Cependant, l'électrode haute-tension ayant été profilée de telle sorte que les paramètres géométriques de la chambre satisfassent à la relation (27), la zone d'égale sensibilité est suffisante (fig. 19).

La source est placée sur un plateau de balza supporté par un tube de céloron de 0,2 mm d'épaisseur. Ce tube coulisse dans un évidement à la base de la chambre, ce qui assure un bon centrage. La position du plateau est repérée par une échelle graduée extérieure à la chambre.

On mesure d'abord le courant d'ionisation dû à une source étalon de Radium, placée verticalement, de manière que son axe coïncide avec celui de la chambre. Les valeurs obtenues pour plusieurs épaisseurs de la paroi intérieure permettent d'extrapoler le courant à l'épaisseur zéro. On opère ensuite de même avec une ampoule de solution étalon. Les ampoules utilisées ont un diamètre extérieur de 16 mm. Elles contiennent en général 5 cm³ de solution, soit une épaisseur de liquide de 2,5 cm.

De l'activité de la solution et des valeurs extrapolées des courants d'ionisation, on déduit par la relation (9), compte-tenu des coefficients de correction, dont il est parlé plus loin, le coefficient K du radioélément.

La sensibilité de la chambre au ^{60}Co est sensiblement de $1,2 \cdot 10^{-11}$ a/mc. Le courant de mouvement propre étant de l'ordre de 10^{-14} a., le seuil d'activité mesurable est de 10 μc .

Les facteurs de correction dont il faut tenir compte dans les mesures appartiennent à deux catégories :

- les facteurs de correction dus à la forme de la chambre et à la nature de ses parois. Du calcul de ces différents facteurs, on peut déduire une correction globale, ne dépendant que de l'énergie efficace γ du radioélément considéré.

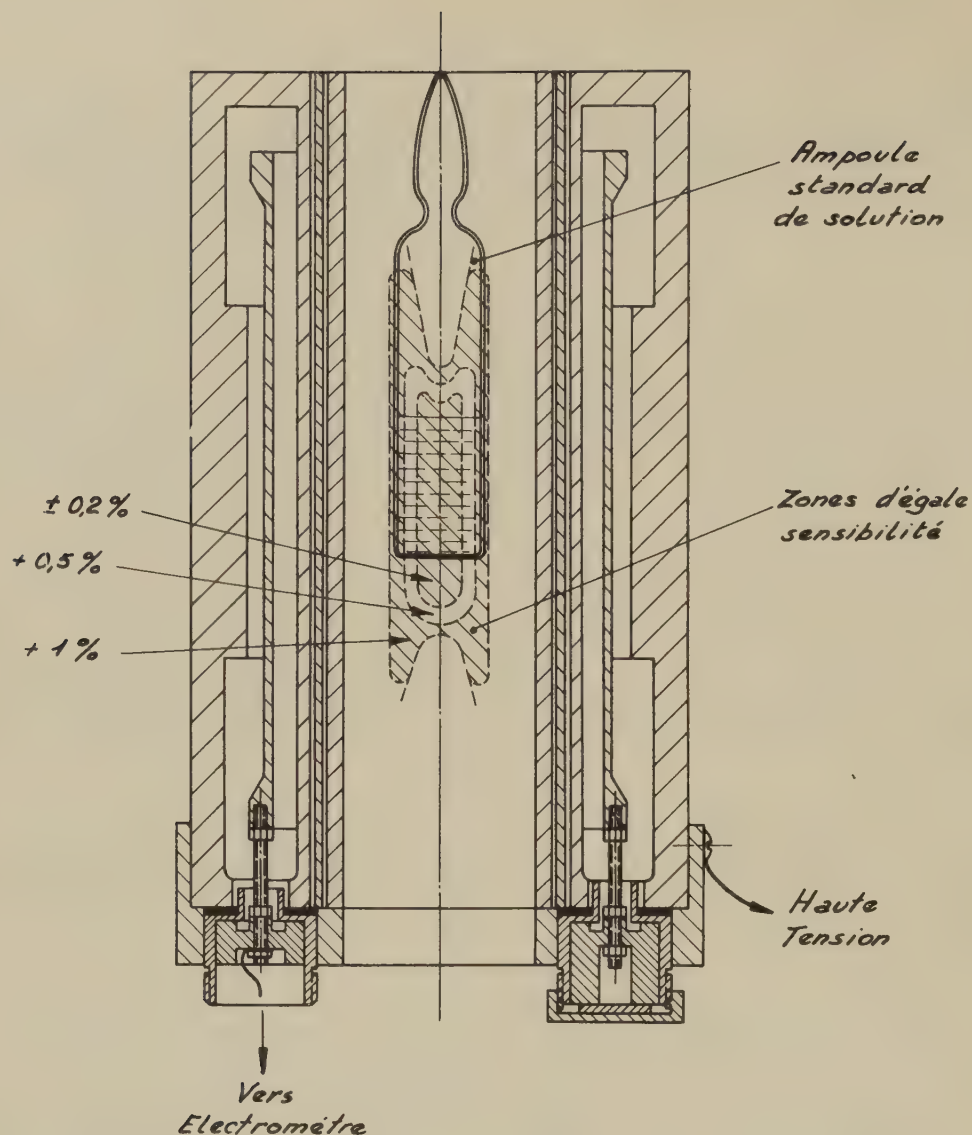


Fig.19 - Chambre cavité à haute efficacité. Ampoule de solution étalon en position mesure.

- les facteurs de correction dus au mode de désintégration du radioélément considéré.

A - FACTEURS DE CORRECTION DE GEOMETRIE, D'ABSORPTION ET DIFFUSION

Les mesures étant effectuées par comparaison à un étalon de Radium, il n'y a pas lieu de tenir compte des variations de sensibilité dues aux changements de conditions atmosphériques. Il en est de même pour le défaut de saturation car, dans le domaine étudié, celui-ci ne dépend pratiquement pas de l'activité de la source, mais seulement de la haute-tension appliquée.

Par contre, on doit tenir compte de tous les facteurs de correction liés à l'absorption ou la diffusion des γ , puisqu'ils dépendent de l'énergie γ .

a) Correction de géométrie

Les courbes d'égale sensibilité tracées dans un plan méridien de la chambre montrent que pour des mesures précises, il y a lieu de tenir compte d'une correction de géométrie pour les solutions contenues dans les ampoules.

La solution, de volume V peut être considérée comme constituée d'éléments de cylindre concentriques, de volume ΔV , pour chacun desquels la sensibilité de la chambre est constante et égale à m fois la sensibilité sur l'axe.

Le coefficient de correction à appliquer à la valeur du courant mesuré sera donc :

$$C_g = \frac{V}{\sum [m \Delta V]}$$

Pour les ampoules utilisées, $C_g = 0,994$.

b) Absorption dans la paroi intérieure de la chambre

Lorsque le rayonnement γ est associé à un rayonnement β de forte énergie, il n'est pas possible de tracer la courbe d'absorption des γ dans le graphite et de l'extrapoler à l'épaisseur zéro. Il faut garder en effet une épaisseur de paroi suffisante pour que les β ne pénètrent pas dans le volume sensible de la chambre. Les mesures sont effectuées dans ce cas avec une épaisseur de paroi de 8 mm.

Le courant d'ionisation, mesuré dans ces conditions doit être affecté d'un coefficient de correction C_a pour tenir compte de l'absorption des γ dans la paroi. Ce coefficient ne dépend que de l'énergie moyenne γ . La méthode d'extrapolation, appliquée à des radioéléments émetteurs β mous, γ , permet d'en déterminer la valeur pour quelques énergies γ et de déduire la courbe de C_a en fonction de l'énergie efficace $\bar{E}$.

Cette courbe expérimentale ne peut pas être vérifiée facilement par le calcul. En effet, pour calculer l'absorption dans la paroi de la chambre, on ne peut pas utiliser simplement le coefficient massique d'absorption totale de la paroi vis-à-vis des γ (représentant la proportion de photons qui disparaissent du faisceau par effet photo-électrique, Compton, ou de matérialisation), car le faisceau γ n'est pas canalisé. On se trouve dans des conditions particulières de "faisceau large", avec possibilité pour un photon, après diffusion dans la paroi vers l'arrière, de pénétrer dans le volume sensible de la chambre ; par suite, on ne peut pas corriger ce coefficient d'absorption d'un facteur de "build up" calculable.

On peut cependant donner à C_a la forme classique d'un facteur de correction d'absorption, à condition d'utiliser un coefficient massique d'absorption efficace $(\frac{\mu}{\rho})_{ef}$ valable pour les conditions géométriques considérées :

$$C_a = 1 - e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{ef} x} \quad (33)$$

où x est l'épaisseur de la paroi en g/cm^2 .

De la courbe expérimentale de C_a en fonction de $\bar{E}$, on peut déduire la courbe de $(\frac{\mu}{\rho})_{ef}$ en fonction de E , (fig. 20). On a tracé également, à partir des valeurs données dans les tables, les courbes de $(\frac{\mu}{\rho}_t)$ et $(\frac{\mu}{\rho}_v)$ en fonction de $\bar{E}$, où $(\frac{\mu}{\rho}_t)$ est le coefficient massique d'absorption totale et $(\frac{\mu}{\rho}_v)$ le coefficient massique d'absorption vraie (proportion d'énergie "déposée" par le faisceau par $g.$ de paroi). On constate que pour les énergies supérieures à 0,5 MeV, $(\frac{\mu}{\rho})_{ef}$ est voisin de $(\frac{\mu}{\rho}_v)$.

De ces courbes, on peut déduire, en fonction de $\bar{E}$ les valeurs d'un coefficient b , nécessaires à un autre calcul de correction. Ce coefficient b est donné par la relation :

$$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{ef} = b \left(\frac{\mu}{\rho}_t\right)$$

b ne dépend que de l'énergie γ pour les faibles valeurs de x .

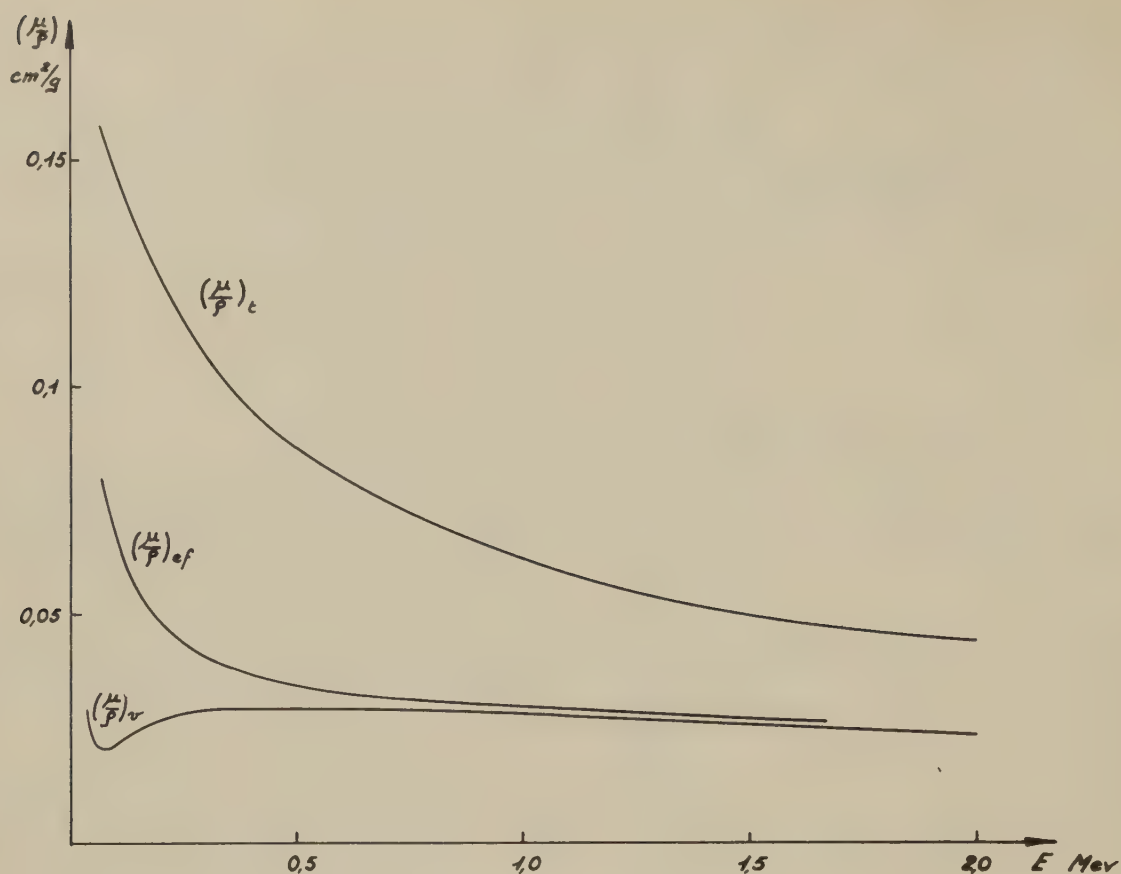


Fig. 20 - Coefficients d'absorption massiques du graphite vis-à-vis des γ .

c) Autoabsorption dans la solution

Pour une source cylindrique contenant un radioélément uniformément distribué, la dose d'exposition dans un plan médian, perpendiculaire à l'axe du cylindre, est :

$$D = D_0 e^{-\frac{8}{3\pi} \mu_{ef} R} \quad (35)$$

où D_0 est la dose qu'on aurait mesurée au même point s'il n'y avait pas eu d'autoabsorption [45].
 R est le rayon du cylindre en cm.

μ_{ef} est le coefficient linéaire d'absorption efficace de la source pour les γ qu'elle émet.

Dans cette formule, le coefficient $\frac{8}{3\pi}$ est voisin de 1. Tout se passe donc sensiblement comme si la source était rassemblée le long de l'axe du cylindre et entourée d'un écran absorbant d'épaisseur R . On se trouve ainsi ramené aux mêmes conditions géométriques que pour l'absorption dans le graphite et le coefficient d'autoabsorption peut s'écrire :

$$C_b = e^{-\frac{8}{3\pi} b \mu_t R} \quad (36)$$

où μ_t est le coefficient linéaire d'absorption totale de l'eau pour les γ considérés.

Pour contrôler la validité de ce calcul, nous avons mesuré les courants d'ionisation i_1 et i_2 produits par une source d' ^{198}Au , d'abord sous forme de feuille de 0,01 mm d'épaisseur, puis, après dissolution dans une ampoule standard. La valeur obtenue pour $\frac{i_1}{i_2}$ est : 1,018.

Pour en déduire le coefficient C_b , il faut corriger i_1 de l'autoabsorption dans la feuille, soit + 0,2 %, et i_2 de la correction de géométrie, soit - 0,6 %. Nous trouvons ainsi pour C_b une valeur de 1,026 alors que la valeur calculée pour des γ de 0,42 MeV est 1,028, donc en bon accord.

d) Diffusion des γ par les parois extérieures de la chambre

Un effet joue en sens contraire de l'absorption, c'est la diffusion des γ par les parois extérieures de la chambre.

Pour évaluer cet effet, nous n'avons pu procéder par extrapolation comme pour l'absorption dans la paroi intérieure pour des raisons de difficulté de réalisation mécanique. Nous avons du nous contenter d'une évaluation grossière du coefficient de correction C_d correspondant ; cependant une telle évaluation peut suffire puisque, la mesure étant effectuée par rapport au Radium, seules les valeurs relatives de C_d interviennent.

La proportion de photons rétrodiffusés par un écran d'épaisseur a est : $a \sigma_b$ (σ_b : coefficient linéaire donnant la proportion de γ rétrodiffusés). σ_b dépend de l'énergie E_1 des photons incidents.

Soit Ω l'angle solide sous lequel une source placée au centre de la chambre voit la paroi extérieure. Tout photon émis par cette source a une probabilité $\frac{\Omega}{4\pi} \cdot a \sigma_b$ de donner naissance à un photon rétrodiffusé, d'énergie moyenne E_2 . On peut encore traduire ce résultat en disant que ce photon crée dans la paroi une source fictive émettant $\frac{\Omega}{4\pi} \cdot a \sigma_b \times 2$ photons dans l'angle solide 4π , d'énergie E_2 .

Par ailleurs, autre conséquence de la forme adoptée pour les électrodes, le courant d'ionisation est sensiblement indépendant de la position de la source placée sur la paroi extérieure de la chambre : la sensibilité de la chambre pour une telle source est 75 % de la sensibilité pour une source placée au centre de la chambre.

Ainsi, pour calculer l'effet dû à la diffusion des γ , on pourra considérer qu'à la source d'activité A_1 placée au centre de la chambre, se superpose une source d'activité A_2 et d'énergie moyenne E_2 . Compte-tenu de ce que $\frac{\Omega}{4\pi} = 0,8$ pour la chambre étudiée,

$$A_2 = A_1 \times 0,8 \times a \sigma_b \times 2 \times 0,75 \quad (37)$$

Le courant d'ionisation dû à la source A_1 seule est de la forme :

$$i_1 = n A_1 E_1 \left(\frac{\mu_1}{\rho} \right) \quad (38)$$

où n est un coefficient dépendant de la géométrie de la chambre et $\frac{\mu_1}{\rho}$ le coefficient massique d'absorption vraie de l'air vis-à-vis des γ d'énergie E_1 .

On a de même pour la source fictive :

$$i_2 = n A_2 E_2 \left(\frac{\mu_2}{\rho} \right) \quad (39)$$

Des équations (37) à (39), on déduit :

$$\frac{i_2}{i_1} = 1,2 \cdot a \sigma_b \cdot \frac{E_2}{E_1} \cdot \frac{\left(\frac{\mu_2}{\rho} \right)}{\left(\frac{\mu_1}{\rho} \right)} \quad (40)$$

On remarque alors que $(\frac{\mu}{\rho}) \neq (\frac{\mu}{\rho})$. En effet, pour les faibles énergies γ , E_2 est voisin de E_1 , donc les valeurs de $\frac{\mu}{\rho}$ à utiliser pour les rayonnements direct et diffusé sont sensiblement les mêmes, alors que pour les énergies supérieures à 0,5 MeV, E_2 est très inférieur à E_1 , mais dans ce domaine d'énergie, $\frac{\mu}{\rho}$ reste sensiblement constant.

On peut écrire par ailleurs :

$$\sigma_b E_2 = \sigma_{sb} E_1 \quad (41)$$

où σ_{sb} est le coefficient linéaire donnant la proportion d'énergie γ rétrodiffusée.

En définitive, le coefficient de correction C_d à appliquer au courant sera :

$$C_d = \frac{i_1}{i_1 + i_2} \neq 1 - 1,2 \text{ a } \sigma_{sb} \quad (42)$$

On déduit donc les valeurs de C_d de la courbe de variation de σ_{sb} pour le graphite en fonction de l'énergie (fig.21). Les valeurs utilisées sont tirées des tables de C.M. Davisson et R. Evans [46].

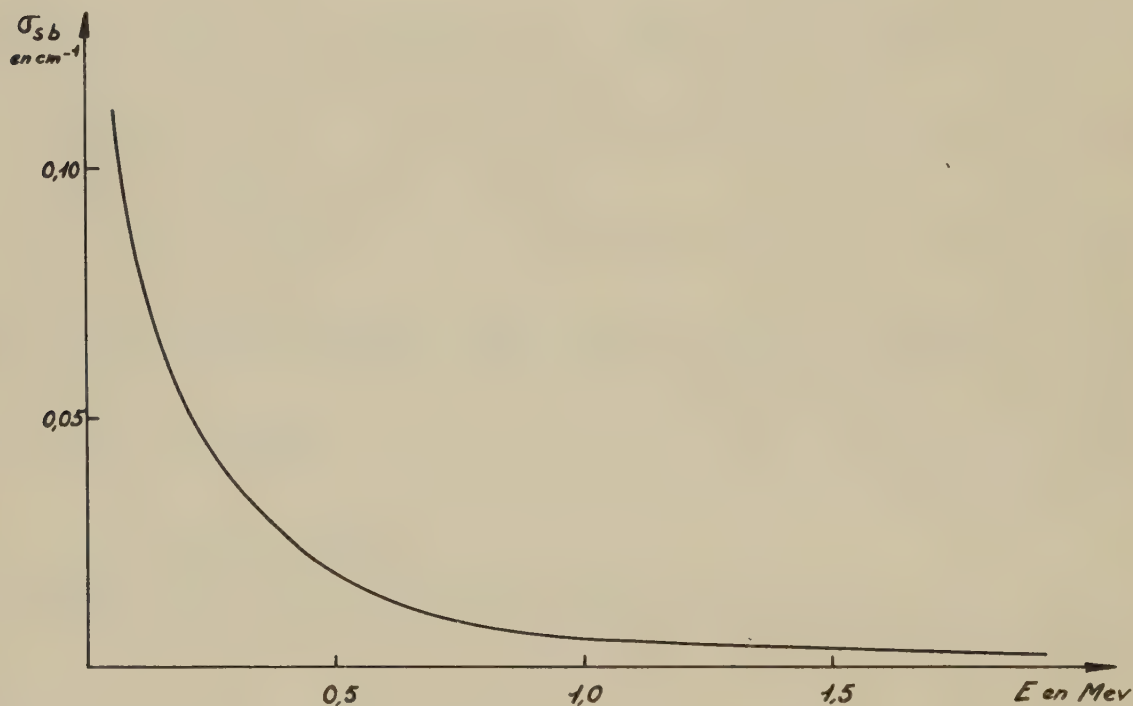


Fig.21 - Coefficient représentant la proportion d'énergie rétrodiffusée dans le graphite par effet Compton.

e) Correction globale

Finalement, le coefficient K du radioélément considéré se déduit de la relation :

$$K_S = \left[\frac{(S_M)_S}{(S_M)_{Ra}} \quad \frac{(C_a)_S}{(C_a)_{Ra}} \quad \frac{(C_d)_S}{(C_d)_{Ra}} \right] \frac{I'_S}{I_{Ra}} \frac{A_{Ra}}{A_S} K_{Ra} \quad (43)$$

où les coefficients portent l'indice S ou Ra suivant qu'ils caractérisent la source à mesurer, ou la source de Radium de référence.

La valeur du rapport $\frac{(S_M)_S}{(S_M)_{Ra}}$ se déduit de la courbe donnant le pouvoir d'arrêt électronique relatif du graphite par rapport à l'air vis-à-vis des électrons secondaires produits par des γ en fonction de l'énergie de ces γ (fig.22). Cette courbe a été tracée en utilisant les valeurs calculées à partir des données de Bakker et Segré [75].

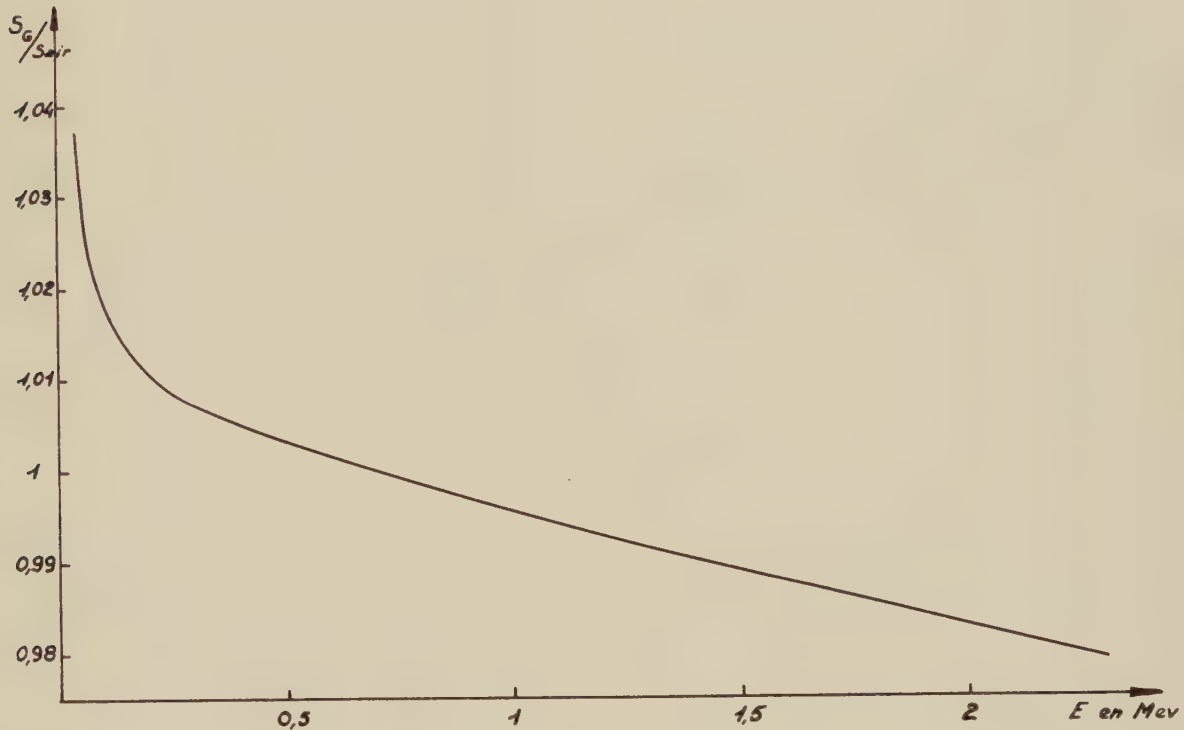


Fig.22 - Pouvoir d'arrêt relatif du graphite par rapport à l'air vis-à-vis des électrons secondaires produits par les γ .

I'_S et I'_{Ra} désignent les valeurs des courants d'ionisation mesurées lorsque l'épaisseur de paroi intérieure est de 8 mm.

Nous avons calculé en fonction de l'énergie γ la valeur du coefficient de correction global (fig.23) :

$$1 + G = \frac{(C_a)_S}{(C_g)_S} \frac{(C_d)_S}{(C_b)_S} \frac{(C_a)_{Ra}}{(C_a)_{Ra}} \frac{(C_d)_{Ra}}{(C_d)_{Ra}} \frac{(S_M)_S}{(S_M)_{Ra}}$$

$1 + G$ est donc le produit des facteurs de la forme $1 \pm x$ où x est inférieure à 1. Pour obtenir un ordre de grandeur de l'erreur commise sur les valeurs de $1 + G$, et évaluer ainsi les écarts types pour quelques points de la courbe, nous avons supposé que pour chaque énergie γ , les valeurs de x des différents coefficients étaient connues à $\pm 20\%$ près, et que ces erreurs avaient un caractère aléatoire.

Si les mesures avaient été effectuées avec une chambre cavité classique, la source étant extérieure à la chambre, il aurait fallu évaluer également ces facteurs de correction sauf le dernier.

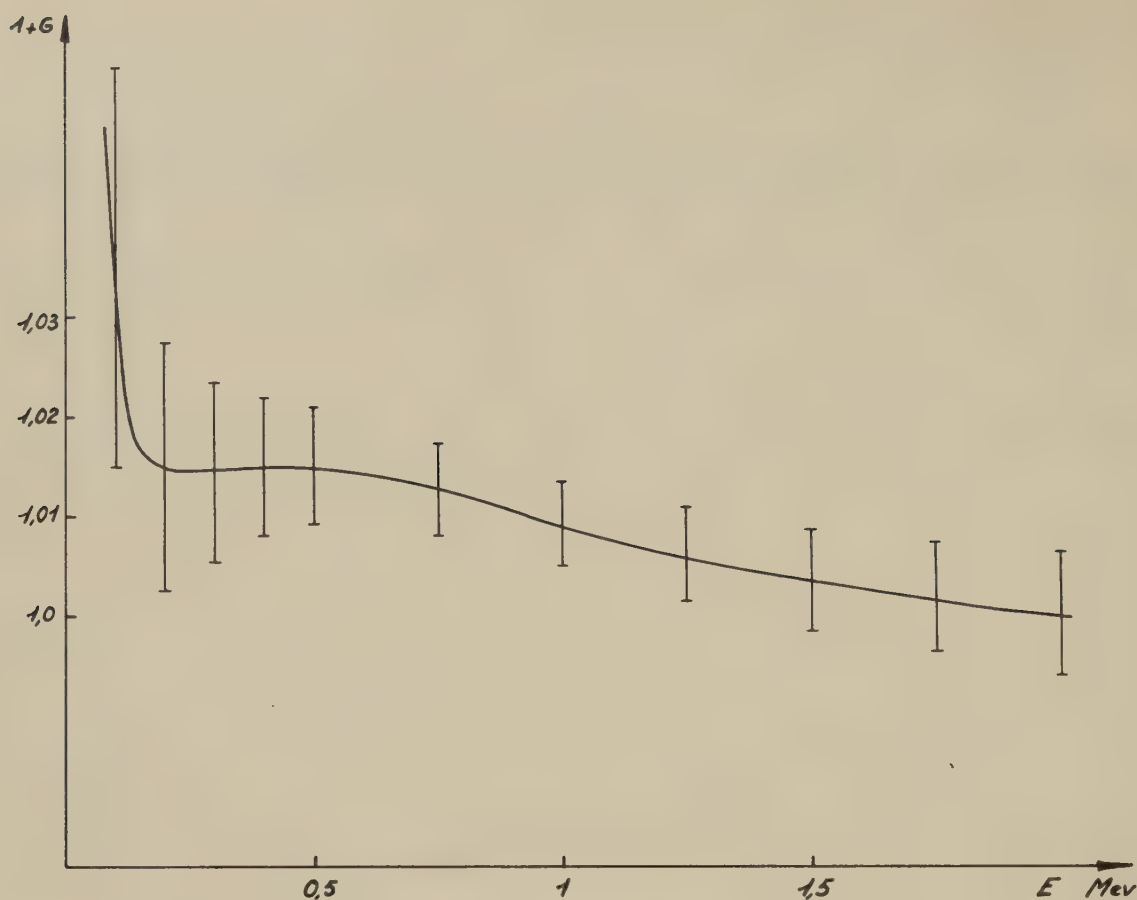


Fig.23 - Coefficient de correction global en fonction de l'énergie γ .

Ainsi, la chambre étudiée présente l'avantage d'une plus haute efficacité, mais l'inconvénient de donner naissance à un effet parasite supplémentaire dû à la diffusion des γ dans la paroi extérieure.

Facteurs de correction dus au mode de désintégration du radioélément

Le coefficient K d'un radioélément ne tient compte que des γ non convertis émis soit lors d'une désexcitation du noyau, soit lors d'une dématérialisation. Il faut donc déduire du courant mesuré la contribution due à des phénomènes secondaires : rayonnement de freinage et rayons X dus à une conversion interne ou une capture électronique.

Cette convention n'est d'ailleurs pas toujours justifiée (le cas du ^{170}Tm par exemple sera examiné plus loin). Elle souffre d'ailleurs une exception : pour le Radium, on ne déduit pas la contribution du rayonnement de freinage prenant naissance dans la source ou dans l'enveloppe de Platine.

a) Correction pour tenir compte du rayonnement de freinage externe des β

Pour une source d'activité connue, on peut calculer approximativement le nombre et la répartition spectrale des rayons X émis lors de l'absorption des β dans un milieu donné.

L'ensemble émetteur β -milieu absorbant se comporte donc comme une source émettrice X et peut être caractérisé par un coefficient K' , calculé de la même manière que le coefficient K pour les émetteurs γ (à conditions que l'absorbant entoure complètement la source, ou encore que la source soit répartie dans un milieu absorbant).

Une formule approchée, due à S. Wyard [47] permet de calculer l'énergie rayonnée par β émis, pour un radioélément d'énergie maximum E_β (exprimée en MeV)

$$F = 1,23 \cdot 10^{-4} (\bar{Z} + 3) E_\beta^2 \text{ MeV} \quad (44)$$

Par ailleurs, Wyard indique également la répartition spectrale des rayons X émis : il donne les valeurs de leurs intensités relatives pour dix bandes d'énergie de largeur $0,1 E_\beta$ (ce qui correspondrait à l'indication donnée par un sélecteur dix canaux analysant le spectre entre 0 et E_β).

De ces valeurs, on peut déduire l'énergie rayonnée dans chaque bande par β émis, soit e_i , exprimée en MeV, dans le cas où le milieu absorbant est de l'eau :

Bande d'énergie β	Energie rayonnée e
de 0 à $0,2 E_\beta$	$1,7 \cdot 10^{-4} E_\beta^2$
0,1 à 0,2 "	$3,0 \cdot 10^{-4} "$
0,2 à 0,3 "	$2,95 \cdot 10^{-4} "$
0,3 à 0,4 "	$2,25 \cdot 10^{-4} "$
0,4 à 0,5 "	$1,10 \cdot 10^{-4} "$
0,5 à 0,6 "	$0,85 \cdot 10^{-4} "$
0,6 à 0,7 "	$0,36 \cdot 10^{-4} "$
0,7 à 0,8 "	$0,10 \cdot 10^{-4} "$
0,8 à 0,9 "	$0,02 \cdot 10^{-4} "$
0,9 à 1,0 "	$0,00 \cdot 10^{-4} "$

L'équation (5) peut s'écrire ici :

$$K' = 193 \sum_0^{10} \left[e_i \left(\frac{\mu_i}{\rho} \right) \right] \quad (45)$$

Nous utilisons pour ce calcul la valeur moyenne de $\left(\frac{\mu_i}{\rho} \right)$ pour chacune des bandes d'énergie. On peut calculer de cette manière le coefficient K' pour différentes valeurs de E_β .

Nous avons trouvé que ces valeurs pouvaient être obtenues sensiblement à partir de la formule empirique :

$$K' = 7 \cdot 10^{-3} E_\beta^2 \quad (46)$$

En réalité, nos conditions expérimentales ne correspondent pas tout à fait aux conditions théoriques du calcul. En effet, une partie des β est arrêtée dans le verre de l'ampoule de numéro atomique nettement plus élevé que celui de l'eau, une partie par les parois de graphite de la chambre, lorsque les β sont suffisamment énergiques pour traverser le verre de l'ampoule ; mais dans ce dernier cas, le numéro atomique est voisin de celui de l'eau. En définitive, on doit s'attendre à trouver un coefficient K légèrement plus élevé que ne le voudrait la formule théorique.

Nous avons procédé à la détermination expérimentale de K' pour deux valeurs de E_β en mesurant le courant d'ionisation donné par des ampoules de solutions-étalons de ^{32}P et de $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ (dans ce dernier cas, la contribution due au ^{90}Sr est faible par rapport à celle de ^{90}Y).

Les valeurs de D' obtenues (pour ^{32}P : 0,00293 et pour le $\text{Sr} - \text{Y}$: 0,055) indiquent que pour nos conditions expérimentales, on doit modifier légèrement le coefficient de la formule (46) :

$$K' = 10^{-2} E_\beta^2 \quad (47)$$

Une telle formule ne peut être qu'assez grossièrement approchée puisqu'on n'a pas tenu compte de la forme du spectre β .

On peut estimer cependant qu'elle donne des résultats approchés à 20 % près, ce qui est suffisant pour le calcul d'un facteur de correction. Elle n'est valable que pour les ampoules du type considéré.

b) Correction pour tenir compte des raies de fluorescence

Si un nuclide se désintègre par capture K, il y a une certaine probabilité ω_K que chaque désintégration soit accompagnée de l'émission d'un rayon X d'énergie E_K . Le taux de fluorescence ω_K et l'énergie E_K ont des valeurs bien connues, fonctions seulement du numéro atomique du noyau.

Ici encore, nous tenons compte de cet effet en introduisant un coefficient K'' . Les valeurs de K'' sont données par la courbe de variation en fonction du numéro atomique de la grandeur Γ_K définie par (fig. 24) :

$$\Gamma_K = 193 \omega_K E_K \left(\frac{\mu_K}{\rho} \right) \quad (48)$$

où $\frac{\mu_K}{\rho}$ est le coefficient massique d'absorption vraie de l'air vis-à-vis de rayons X d'énergie E_K .

En pratique, pour les numéros atomiques inférieurs à 40, les valeurs de E_K sont inférieures à 15 KeV et la contribution de ces rayons X à la dose est négligeable.

On doit tenir compte des raies de fluorescence dans un autre cas, celui où il y a conversion interne des γ .

Soit, d'après le schéma de désintégration, a_i le rapport d'embranchement des γ d'énergie E_γ^i et α_K^i le coefficient de conversion interne pour la couche K. Le nombre, par désintégration, de rayons X d'énergie E_K dus à cette conversion sera :

$$a_i \frac{\alpha_K^i}{1 + \alpha_K^i} \cdot \omega_K$$

Donc le coefficient K''' correspondant à cet effet sera :

$$K''' = \Gamma_K \cdot \sum_i \left[a_i \frac{\alpha_K^i}{1 + \alpha_K^i} \right] \quad (49)$$

Dans le cas assez fréquent où l'on ne connaît pas les valeurs des rapports d'embranchement, mais seulement les intensités relatives b_i des γ non convertis et les coefficients de conversion interne, on ne peut pas calculer directement la valeur de K''' , mais seulement le rapport $\frac{K'''}{K}$:

$$\frac{K'''}{K} = \frac{\Gamma_K}{193} \frac{\sum [b_i \alpha_K^i]}{\sum [b_i E_\gamma^i \frac{\mu_i}{\rho}]} \quad (50)$$

où $\frac{\mu_i}{\rho}$ désigne le coefficient massique d'absorption vraie de l'air vis-à-vis des γ d'énergie E_γ^i .

En définitive, la valeur mesurée du coefficient K d'une source se déduit de l'équation :

$$K + K' + K'' + K''' = (1 + G) \frac{I'_S}{I'_{Ra}} \frac{A_{Ra}}{A_S} K_{Ra} \quad (51)$$

Si l'on pose :

$$\frac{K'}{K} = R_1 \quad \frac{K''}{K} = R_2 \quad \frac{K'''}{K} = R_3$$

dans le cas où R_1, R_2, R_3 sont voisins de zéro, l'expression se ramène à :

$$K = (1 + G - R_1 - R_2 - R_3) \frac{I'_S}{I'_{Ra}} \frac{A_{Ra}}{A_S} K_{Ra} \quad (52)$$

Nous prenons pour erreur relative probable sur la valeur mesurée de K, la valeur quadratique moyenne des erreurs relatives sur les différents facteurs de la formule (51), soit :

pour K_{Ra} : $\pm 0,6 \%$

pour A_{Ra} : $\pm 0,5 \%$

pour $\frac{I'_S}{I'_{Ra}}$: $\pm 0,1 \%$

pour $1 + G$: l'erreur relative déterminée précédemment (variable en fonction de l'énergie).

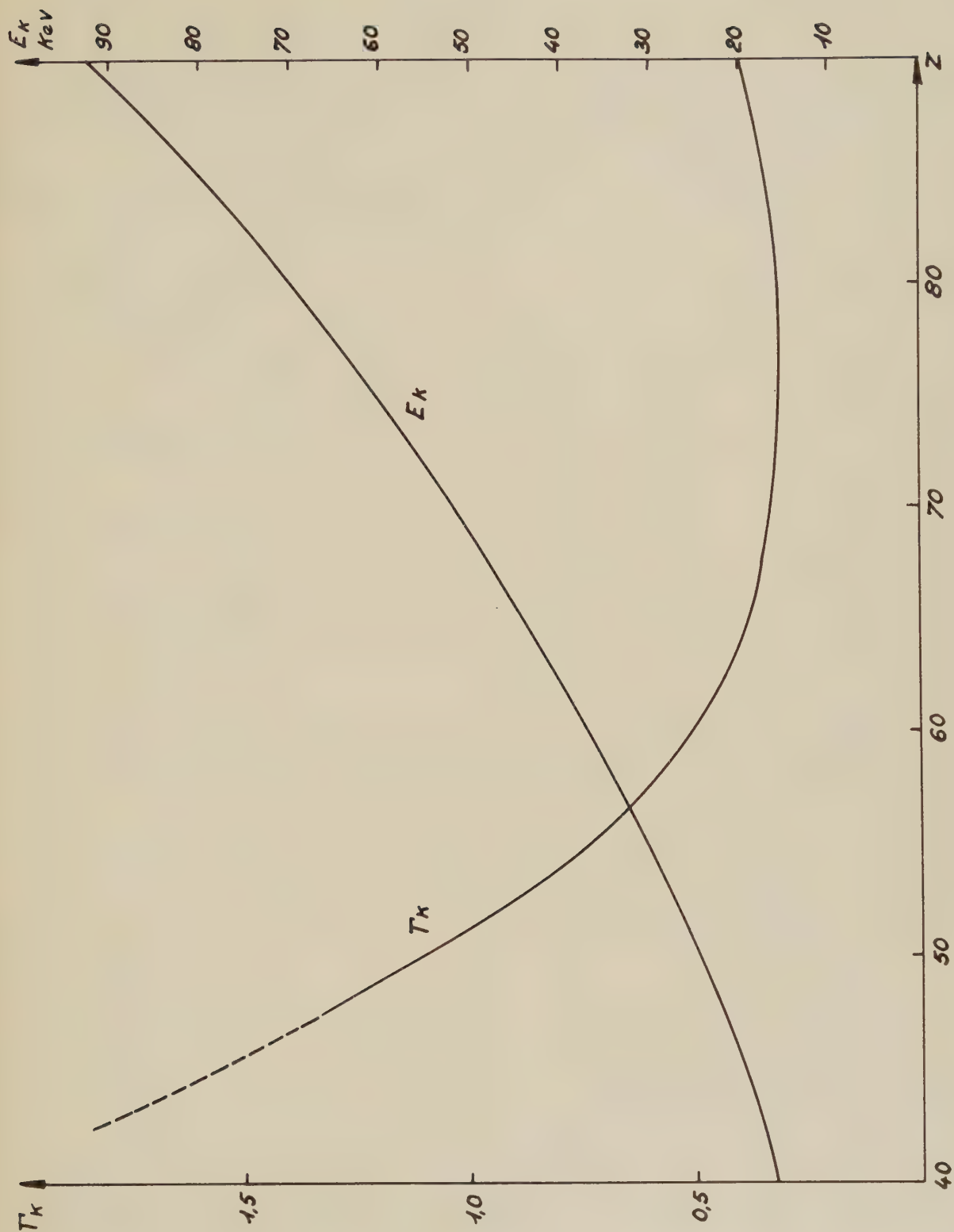


Fig. 24 - Courbes de l'énergie des rayons X de fluorescence et du coefficient Γ correspondant en fonction du numéro atomique du noyau.

pour A_s : $\pm 1,5 \%$ à $\pm 3,5 \%$ suivant les radioéléments.

Détermination du coefficient K de quelques radioéléments

Nous avons d'abord mesuré le coefficient K de quelques radioéléments (^{60}Co , ^{24}Na , ^{131}I , ^{198}Au) pour lesquels la valeur est déjà bien connue. L'accord satisfaisant obtenu a permis de contrôler la validité de la méthode. Nous avons ensuite abordé l'étude de quelques autres radioéléments.

Les solutions étalons utilisées ont été préparées et étalonnées en activité au Laboratoire Mesures du C.E.A. par M. Le Gallic et M. Legrand.

La technique du compteur 4π a été utilisée pour ces étalonnages, sauf pour le ^{51}Cr et le ^{65}Zn , mesurés par coïncidences γ X. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau suivant :

Radio- élément	Réf. du schéma de dés. utilisé dans les calculs	$\bar{E}_\gamma$ en MeV	K calculé	R_1	R_2 + R_3	K mesuré Présent travail	K mesuré autres dé- terminations	
^{24}Na	Strominger [48]	2	18,23	0	0	$18,3 \pm 0,3$	$18,7$ [50]	
^{51}Cr {	Ofer [51]	0,325	0,165	0	0	} $0,183 \pm 0,04$		
	Bunker [62]	0,325	0,179	0	0			
^{56}Mn	Cook [52]	1,13		0,5 %	0	$8,8 \pm 0,2$	$13,1$ [50]	
^{60}Co	Strominger [48]	1,25	12,95	0	0	$13,25 \pm 0,25$		
^{65}Zn	Ricci [53]	1,10	3,00	0	0	$3,05 \pm 0,07$		
^{134}Sb {	Girgis [54]	0,92	9,57	0	0	} $9,90 \pm 0,15$	$2,23$ [50]	
	Mann [13]	0,92	9,82	0	0			
^{131}I	Bell [55]	0,38	2,18	0,3 %	1,7 %	$2,20 \pm 0,05$		
^{134}Cs	Keister [56]	0,77		0	0	$9,32 \pm 0,23$		
^{137}Cs {	Strominger [48]	0,66	3,11	0	2,2 %	$3,35 \pm 0,07$		$3,45$ [58]
	Ricci [57]	0,66	3,23	0	2,2 %	$3,36 \pm 0,07$		
^{141}Ce {	Zorzi [63]	0,14	0,326	0,8 %	28 %	$0,434 \pm 0,012$	K + K' = $0,038$ [5]	
	Jones [64]	0,14	0,416	0,8 %	15 %	$0,46 \pm 0,013$		
^{170}Tm {	Wolfson [79]		0,0115			} K + K' = $0,023 \pm 0,002$		
	Houtermans [80]		0,0130					
	Jaffe [59]		0,0100					
^{192}Ir	Baggerly [60]	0,38		0	0,9 %	$4,90 \pm 0,15$	$4,85$ [58]	
^{198}Au	Strominger [48]	0,42	2,29	0,45 %	0,5 %	$2,31 \pm 0,05$	$2,32$ [50]	
^{203}Hg	Nordling [61]	0,279	1,28	0	5 %	$1,18 \pm 0,4$		

Les erreurs indiquées pour les valeurs de K mesurées sont les erreurs probables dues aux imprécisions sur les différents termes de la formule (51).

On n'a pas tenu compte des erreurs sur les coefficients de correction dues à des indéterminations sur les schémas de désintégration.

Certains radioéléments appellent quelques remarques :

a) ^{51}Cr

Suivant le schéma de S. Ofer et Al. [51], le rapport d'embranchement du γ de 0,325 MeV est de 9 %. La valeur calculée du coefficient K est alors 0,165.

Suivant le schéma de M. Bunker et Al. [62], le rapport d'embranchement est de 9,8 %, ce qui conduit à une valeur de K de 0,179.

La valeur que nous avons mesurée (0,183) semble confirmer ce dernier schéma.

b) ^{124}Sb

La valeur de K calculée à partir du schéma de Girgis et Al. [54] est de 9,57 : à partir d'un autre schéma, W.B. Mann calcule une valeur de 9,82 [13]. Le résultat de la mesure est en bon accord avec cette dernière valeur.

c) ^{137}Cs

Suivant le schéma adopté, on obtient :

Référence du schéma de désintégration	Strominger et Al. [48]	R.A. Ricci [57]
Rapport d'embranchement du γ de 0,51 MeV	0,92	0,96
Coefficient de conversion interne	0,114	0,114
Coefficient K calculé	3,11	3,23
Coefficient K mesuré	3,35	3,36

Les valeurs de K mesurées diffèrent légèrement suivant le schéma utilisé du fait que la mesure de l'activité de la solution doit être corrigée des électrons de conversion interne dus au ^{137m}Ba .

Le résultat de la mesure est en bon accord avec la valeur mesurée par L.K. Burton et Al [58] et avec la valeur calculée à partir du schéma de Ricci.

d) ^{141}Ce

Expérimentalement, on trouve $K + K''' = 0,522$.

Les valeurs de K mesurées et calculées dépendent du schéma adopté :

Référence du schéma de désintégration	G. Zorzoli (63)	U. Jones et Al. (64)
Rapport d'embranchement du γ de 0,145 MeV	0,67	0,75
Coefficients de conversion interne	$\alpha_K = 0,37$ $\alpha_L = 0,06$	$\alpha_K = 0,22$ $\alpha_L = 0,04$
Coefficient K calculé	0,326	0,416
Coefficient K'''	0,0925	0,062
Coefficient K mesuré	$0,434 \pm 0,012$	$0,46 \pm 0,013$

Il y a donc meilleur accord entre les valeurs de K calculée et mesurée si l'on adopte le schéma de Jones.

e) ^{170}Tm

Pour ce radioélément, on ne peut pas déduire de la mesure une valeur de K très significative. En effet, les rayons X dus à la conversion interne des γ apportent une contribution à la dose du même ordre de grandeur que celle due aux γ non convertis.

Par ailleurs, les rapports d'embranchement ne sont pas connus avec une bonne précision. Suivant le schéma adopté, on calcule les valeurs suivantes pour K et K''' :

Référence du schéma de désintégration	J.L. Wolfson et Al. [79]	H. Houtermans [80]	H. Jaffe [59]
Nombre de γ non convertis par désintégration	0,03	0,034	0,026
Coefficient de conversion interne α_K	1,6	1,34	1,6
Nombre de rayons X (couche K) par désintégration	0,044	0,042	0,037
Coefficient K calculé	0,0115	0,0130	0,0100
Coefficient K'''	0,0165	0,0158	0,0138
Valeur calculée de $K + K'''$	0,0280	0,0288	0,0238

Pour nos conditions expérimentales, la valeur calculée du coefficient K' (qui permet de tenir compte du rayonnement de freinage des β) est de 0,0094. Compte-tenu de cette correction, la valeur mesurée de $K + K''$ est de $0,0230 \pm 0,0020$.

Cette valeur est en bon accord avec la valeur calculée à partir du schéma de Jaffe, mais en désaccord avec la valeur de 0,038, mesurée en 1954 par Sinclair et Al. [5].

Dans le cas des sources solides de Thulium, les valeurs du coefficient K et du courant d'ionisation donné par une chambre air-équivalente ne permettent pas de déduire l'activité efficace, car la contribution du rayonnement de freinage devient très importante et n'est guère calculable. Aussi est-il préférable de convertir directement la valeur du courant mesuré en débit de dose d'exposition donné par la source à une certaine distance.

Pour ce radioélément cependant, les mesures risquent d'être entachées d'une erreur supplémentaire : pour les faibles énergies γ , la valeur du coefficient B à utiliser (qui tient compte du pouvoir d'arrêt de la paroi vis à vis des électrons secondaires créés par les γ) dépend de manière sensible des dimensions de la cavité.

Il serait donc préférable d'utiliser pour cette mesure, ou bien une chambre-cavité à extrapolation (à distance interélectrode variable), ou bien une chambre à air libre qui pourrait être de petites dimensions puisque les électrons secondaires produits ont une énergie inférieure à 84 KeV.

CHAPITRE V

DISPOSITIFS ÉLECTROMÉTRIQUES ASSOCIÉS AUX CHAMBRES D'IONISATION

La précision et la fidélité des mesures d'activité dépendent essentiellement du dispositif électrométrique associé aux chambres d'ionisation.

Mesure du courant par la chute de tension dans une résistance de haute valeur

Aux chambres destinées aux mesures de routine, des considérations de simplicité et de rapidité de mesure conduisent le plus souvent à associer un amplificateur de courant continu à couplage direct ou à condensateur vibrant.

En ce cas, la mesure de courant est entachée des erreurs provenant des facteurs suivants :

- a) Le voltmètre de sortie est en général étalonné à 1 % près.
- b) La résistance d'entrée de haute valeur est connue à 1 % près pour une tension appliqué donnée.
- c) Cette résistance présente un coefficient de tension, de l'ordre de - 0,1 % par volt, qui se traduit par un défaut de linéarité sur la réponse en tension de l'appareil.

S'y ajoutent des facteurs affectant la fidélité des mesures :

- a) La valeur de la résistance d'entrée peut subir une évolution lente dans le temps, dépendant de son état de vieillissement.
- b) Cette résistance présente un coefficient de température, de l'ordre de - 0,1 % par degré C.

Pour les mesures relatives de courant, en opérant par exemple par comparaison avec une source de Radium, seules interviennent les erreurs de lecture et d'étalonnage du voltmètre de sortie et le coefficient de tension de la résistance d'entrée. Lorsque ce dernier est connu, on peut en tenir compte en affectant la mesure d'un coefficient de correction fonction de la tension de sortie.

Ces appareils permettent donc, moyennant quelques précautions d'atteindre une précision de l'ordre de 1,5 % sur la valeur du rapport de deux courants. Encore faut-il que les mesures de la source inconnue et de la source de référence soient effectuées avec la même résistance d'entrée. Dans le cas où, pour étendre la gamme de mesure, le préamplificateur comporte deux résistances R_1 et R_2 commutables telles que $\frac{R_2}{R_1} \neq 100$, il est nécessaire de disposer également de deux sources de référence telles que le rapport de leurs activités efficaces $\frac{A_1}{A_2} = x$, voisin de 100 soit connu une bonne précision.

La mesure de x peut être effectuée avec la chambre associée au préamplificateur considéré, en utilisant une source auxiliaire de courte période. On mesure d'abord la tension V_1 aux bornes de la résistance R_1 due à la source d'activité A_1 , puis la tension V_2 aux bornes de R_2 due à la source A_2 , placée dans les mêmes conditions géométriques. On introduit ensuite dans la chambre une source de courte période et on mesure le temps θ qui s'écoule entre l'instant où la tension aux bornes de R_1 est V_1 et l'instant où la tension aux bornes de R_2 est V_2 . Le rapport x cherché est alors simplement : $x = e^{\lambda \theta}$ ou λ est la constante radioactive du radioélément à courte période.

Cette méthode présente l'avantage qu'il n'est pas nécessaire de connaître les valeurs des résistances, et qu'un défaut de linéarité de la chaîne de mesure n'intervient pas (ces défauts de linéarité pouvant être dus à un défaut de saturation de la chambre, à un mauvais étalonnage du voltmètre de sortie et au coefficient de tension des résistances).

Il est commode d'utiliser comme source auxiliaire une source d' ^{116}In , dont la période est connue avec une bonne précision ($T = 54 \text{ minutes} \pm 0,05 \%$). L'Indium présente en outre l'avantage que sa section efficace d'activation est élevée et qu'on peut l'obtenir pratiquement exempt d'impuretés.

Pour des sources dont le rapport d'activité est de 100, un calcul d'erreur montre que l'erreur relative sur x est égale à 4,7 fois l'erreur relative sur la période de la source auxiliaire. A cette erreur, de l'ordre de 0,2 % dans le cas de l'Indium, s'ajoutent les erreurs de lecture. Il est à noter cependant qu'il faut retrancher de toutes les mesures de tension la contribution du mouvement propre (car celui-ci dans le cas de la source auxiliaire serait assimilable à une impureté de période infinie). Il peut en résulter une erreur de mesure supplémentaire.

Mesure de la charge intégrée due au courant d'ionisation

Les méthodes de compensation, utilisées depuis les débuts de la radioactivité, permettent d'obtenir une meilleure précision sur la mesure des courants d'ionisation.

Le courant mis en opposition avec le courant à mesurer est obtenu soit par effet piézoélectrique sur un quartz, soit par une méthode d'influence au moyen d'un condensateur étalon. Le détecteur de zéro peut être soit un électromètre à quadrants, soit un amplificateur de courant continu à grille isolée.

Les méthodes de compensation au moyen d'un condensateur étalon reposent toutes sur le même principe, mais peuvent donner lieu à quelques variantes (fig.25) :

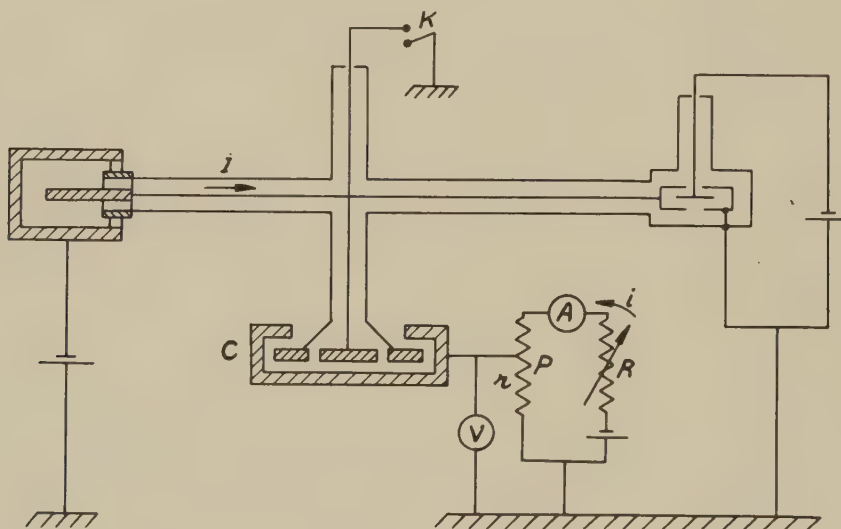


Fig.25 - Méthodes de compensation avec condensateur étalon.

a) La méthode de Townsend

Le condensateur C et la résistance R sont constants et on fait varier la tension appliquée à une armature du condensateur de V_0 à V en déplaçant le curseur du potentiomètre P . On compense ainsi le courant I à mesurer pendant un temps t , et I se déduit de la relation :

$$I = \frac{C (V - V_0)}{t} \quad (53)$$

b) La méthode de Hartshorn [65]

A tension V constante, on fait varier la valeur du condensateur de C_0 à C . On a cette fois :

$$I = \frac{V (C_0 - C)}{t}$$

c) La méthode de Hübner [66].

Sans déplacer le curseur du potentiomètre, on fait varier le courant i traversant la chaîne potentiométrique de i_0 à i . On a alors :

$$I = \frac{C R (i - i_0)}{t}$$

Cette dernière méthode, développée pour la dosimétrie des rayons X se prête bien à l'automatisation : la résistance variable R (fig.25) peut être constituée par la résistance interne d'une lampe à pente variable dont le potentiel grille est commandé par des cellules photoélectriques éclairées par le spot de l'électromètre.

Pour la mesure de sources radioactives, la méthode présente l'inconvénient que le courant i croît tant que la source se trouve dans la chambre et qu'à moins de passer par l'intermédiaire d'un enregistreur, il faut lire "au vol" l'indication de l'ampèremètre.

d) La méthode du "taux de dérive" avec un amplificateur de courant continu

La résistance d'entrée d'un amplificateur à contre-réaction totale est remplacée par un condensateur à haut isolement [67].

L'appareil se comporte comme un dispositif à compensation automatique : les charges apportées par le courant d'ionisation sur une des armatures du condensateur sont compensées par les charges induites dues à la variation de la tension de sortie, et la tension d'entrée reste au voisinage de la masse. Moyennant quelques conditions restrictives [68], le courant d'ionisation est relié à la tension de sortie par l'équation (53).

Méthode de Townsend avec enregistrement automatique du temps

Pour obtenir une bonne précision sur la mesure du courant, il y a intérêt à enregistrer automatiquement le temps t s'écoulant entre le début et la fin de la compensation.

Le dispositif que nous avons utilisé pour la chambre-cavité à haute efficacité est dérivé de celui décrit par Costrell et Attix [69] et ne fait appel qu'à de l'électronique standard.

On utilise encore la méthode de Townsend, le détecteur de zéro étant un amplificateur de courant continu. Le chronomètre est constitué par un oscillateur à quartz de 1 kilocycle attaquant une échelle de 1000. La marche et l'arrêt de l'échelle sont commandées par le relais de fin de course du voltmètre de sortie de l'amplificateur, utilisé sur sa sensibilité 50 mV (fig.26).

Ainsi la mesure se décompose en trois temps :

a) Avant la compensation, le dispositif se comporte en montage à "taux de dérive" et la tension de sortie croît linéairement en fonction du temps jusqu'à 50 mV. L'échelle commence alors à compter.

b) On ramène et maintient la tension de sortie V à zéro jusqu'à ce que le potentiomètre soit en fin de course.

c) La tension de sortie recommence à croître linéairement avec la même pente que dans la première phase. Lorsque V atteint 50 mV, l'échelle s'arrête de compter.

Tout se passe donc comme si la tension de sortie était restée constamment nulle. Si I est le courant d'ionisation et v la tension de compensation appliquée, l'équation du circuit s'écrit :

$$I = \frac{v}{R \left[1 - e^{-\frac{t}{CR}} \right]} \quad (54)$$

où R est la résistance parallèle du condensateur C utilisé.

Si $t \ll CR$, l'équation se ramène à :

$$I = \frac{C v}{t} \quad (55)$$

En particulier, si $t < 0,002 CR$, les valeurs de I tirées de ces deux équations sont les mêmes à 0,1 % près.

Par exemple, pour $C = 100 \mu\text{f}$ et $t = 100 \text{ Sec}$, il faut que le condensateur ait une résistance d'isolement supérieure à $R \cdot 10^{14} \Omega$. Les condensateurs à air utilisés habituellement pour ces mesures ont un isolement suffisant à condition que l'air ambiant ne soit pas trop humide ; par ailleurs, ils sont très encombrants et doivent être protégés du rayonnement (car le condensateur se comporterait en chambre d'ionisation, et aurait de ce fait une résistance parallèle supplémentaire).

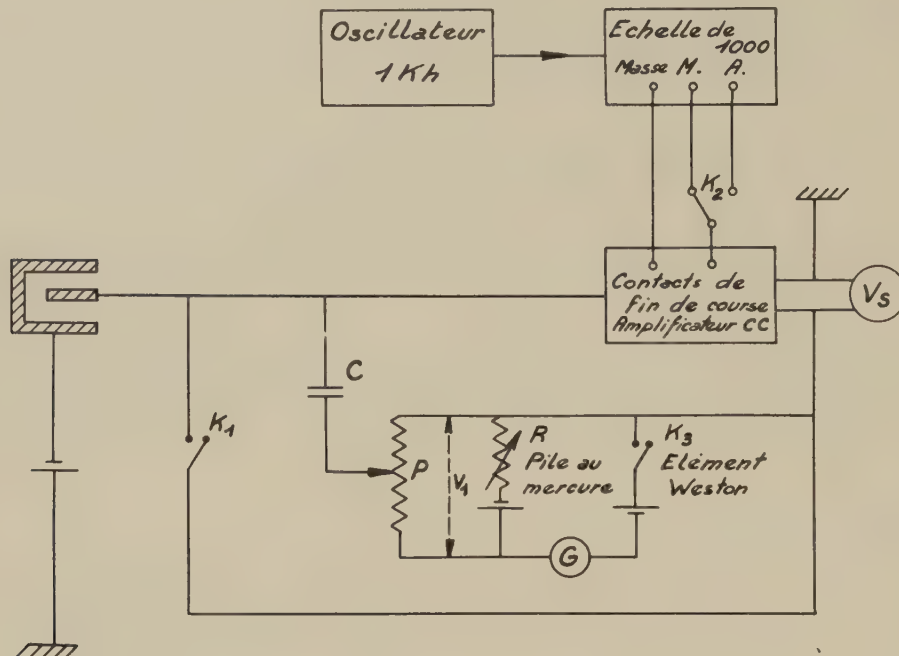


Fig.26 - Méthode de Townsend avec enregistrement automatique du temps.

Il existe des condensateurs au polystyrène, ou en verres spéciaux ayant une résistance d'isolement très élevée (supérieure à $10^{17} \Omega$ pour les condensateurs en verre). Enfermés dans un blindage étanche, ils sont stables dans le temps et d'un emploi commode : un jeu de ces condensateurs peut permettre de couvrir une gamme de courants étendue.

Evaluation de la précision

Les condensateurs utilisés ont été étalonnés à 0,3 % près.

La tension V peut être connue à 0,1 % près : le montage potentiométrique $P R$ permet de lui donner exactement pour valeur la tension d'un élément Weston.

En ce qui concerne la mesure du temps, la période des oscillations du quartz est connue à 0,01 % près. Le relais peut présenter un retard au déclenchement $\tau + \Delta\tau$, mais seules interviennent dans la mesure les fluctuations de retard $\Delta\tau$; celles-ci étant inférieures à 0,01 s., le temps t sera mesuré à mieux que 0,1 % près s'il est supérieur à 10 s.

Enfin, le rapport $\frac{V}{t}$ étant supérieur à 0,01 v/s, la dérive lente de l'amplificateur, inférieure à 3 mV/h n'intervient pas.

Ce dispositif permet donc d'effectuer des mesures de courant d'ionisation à mieux que 0,5 % près ; la fidélité est assurée à 0,1 % près si le temps t est supérieur à 10 s.

En pratique, on effectue les mesures du courant d'ionisation pour une haute-tension appliquée positive, puis négative. On opère de même pour mesurer le courant dû au mouvement propre. Celui-ci constituant un terme correctif, on peut se contenter d'une moins bonne précision sur sa détermination ; aussi, pour éviter de faire une mesure avec un temps t trop long, préférons-nous utiliser en ce cas la méthode du "taux de dérive" ; on laisse alors V constant et on mesure le temps t correspondant à une certaine excursion de tension V .

Il est à noter que le rapport des activités $\frac{A_1}{A_2}$ de deux sources se déduit directement du rapport $\frac{t_2}{t_1}$ (Si C et V sont les mêmes pour les deux mesures). L'appareil, par analogie aux dispositifs de comptage individuel des particules se comporte comme un dispositif de précompte ; ici, la grandeur précomptée est la charge C V et il est logique que le résultat de la mesure s'exprime en $\frac{1}{t}$ puisque c'est précisément l'équation aux dimensions d'une activité.

CONCLUSION

En métrologie radioactive, deux types de chambres d'ionisation trouvent une large application :

- les chambres-cavités "air équivalentes", permettant des mesures absolues indirectes d'activité de sources radioactives.

- les chambres à puits γ , instruments de mesures relatives particulièrement bien adaptées aux mesures de routine.

Nous avons réalisé quelques chambres appartenant à ces deux catégories. Leurs caractéristiques et leur mode d'utilisation sont exposés dans ce travail. Nous avons montré quels critères doivent présider au choix de leurs paramètres pour les doter de bonnes performances. Sont enfin indiqués les résultats obtenus dans la détermination du coefficient K (ou "coefficient spécifique d'émission γ ") de quelques radioéléments.

I - CHAMBRES D'IONISATION-CAVITES "AIR-EQUIVALENTES"

Pour une source placée à une certaine distance de la chambre, le courant d'ionisation est proportionnel au rapport de l'activité de la source au coefficient K du radioélément. La connaissance de deux de ces facteurs permet le calcul du troisième.

Pour éviter des erreurs systématiques, il faut appliquer des coefficients de correction aux paramètres intervenant dans cette relation.

Les corrections d'absorption conduisent à définir ce que nous entendons par "énergie efficace γ " d'un radioélément.

Nous avons calculé la correction due à l'hygrométrie de l'air et la correction de géométrie qui permet de tenir compte des dimensions de la chambre. Le calcul de cette correction a été développé dans le cas d'une source placée dans le plan de section droite médian d'une chambre cylindrique. Le coefficient de correction trouvé reste voisin de l'unité pour une chambre dont le rapport de la longueur au diamètre est de 1,2. Le dispositif utilisé a permis, en particulier, de trouver pour le coefficient K du radium, une valeur en bon accord avec la valeur admise de 8,25 r/h par mg à 1 cm.

II - CHAMBRES D'IONISATION A Puits A REMPLISSAGE D'ARGON

De telles chambres présentent l'intérêt d'avoir une bonne efficacité vis-à-vis des γ émis par la source, et une réponse en courant dépendant très peu de la position de la source dans le puits.

Nous avons calculé la réponse théorique de la chambre moyennant quelques approximations. Ce calcul a permis de trouver que la zone d'égale sensibilité pouvait être accrue grâce à une modification de la forme des électrodes : la distance qui les sépare doit être plus grande aux extrémités qu'au centre. Ces paramètres géométriques sont calculés.

Trois types de chambres ont été réalisées. Elles sont adaptées aux mesures d'activités dans trois gammes différentes, couvrant au total 9 décades (de 0,2 μ c à 200 curies). Ces chambres diffèrent essentiellement par la distance interélectrode et la pression de remplissage en Argon. Les étalonnages d'une de ces chambres pour divers radioéléments ont permis de déduire sa courbe de réponse en fonction de l'énergie des γ .

Enfin, nous avons réalisé une chambre d'ionisation à puits destinée à la mesure des émetteurs β par le rayonnement de freinage associé. Elle diffère des précédentes essentiellement par la nature de ses parois.

III - CHAMBRE D'IONISATION A PUIITS A PAROIS AIR-EQUIVALENTES. APPLICATION A LA DETERMINATION DES COEFFICIENTS K DE QUELQUES RADIOELEMENTS -

Pour bénéficier des avantages respectifs de chacun des types précédents, nous avons construit une chambre d'une catégorie intermédiaire : chambre à puits, réalisée en graphite et remplie d'air. Elle présente l'avantage de permettre, par comparaison avec un étalon de Radium, la détermination de coefficient K, à partir de solutions relativement peu actives. Les différents facteurs de correction à appliquer aux mesures ont été étudiés : autoabsorption dans la source, absorption et diffusion des γ par les parois de la chambre.

Pour certains radioéléments, il faut introduire, en outre, des facteurs de correction pour tenir compte du rayonnement de freinage des β , et du rayonnement X, dû soit à une conversion interne des γ , soit à une capture K. Nous avons ainsi déterminé le coefficient K de quelques radioéléments. Pour certains d'entre eux (^{60}Co , ^{24}Na , ^{131}I , ^{198}Au) la valeur en était déjà bien connue et l'accord satisfaisant a permis de contrôler la validité de notre méthode.

On a également mesuré le coefficient K de quelques radioéléments pour lesquels une telle détermination n'avait pas encore été faite à notre connaissance (^{51}Cr , ^{56}Mn , ^{65}Zn , ^{134}Cs , ^{141}Ce) ou avait donné, d'après les valeurs publiées, des résultats divergents (^{170}Tm , ^{137}Cs , ^{192}Ir , ^{203}Hg).

Dans tous les cas, nos résultats ont été confrontés aux valeurs calculées à partir des schémas de désintégration actuellement admis.

IV - DISPOSITIFS ELECTROMETRIQUES ASSOCIES AUX CHAMBRES D'IONISATION

Suivant la précision de mesure recherchée, nous avons associé aux chambres différents dispositifs électrométriques. L'un d'entre eux, bien que de conception simple, permet de mesurer des courants d'ionisation avec une précision de $\pm 0,5\%$ et une fidélité de $\pm 0,1\%$.

BIBLIOGRAPHIE

- 1 - L.H. GRAY - An ionization method for the absolute measurement of γ ray energy. Proc. of the Royal Soc, 889, 156, 579 (1936)
- 2 - L.H. GRAY - The experimental determination by ionization methods of the rate of emission of β and γ ray energy by radioactive substances. Brit. J. of Radiol. XXII 264, 677 (1949)
- 3 - L.H. GRAY - Brit. Med. Bull. 8, 2/3, 115 (1952)
- 4 - W.E. PERRY - Standardisation of radioactive isotopes Rapport NPL (Mai 1953)
- 5 - W.K. SINCLAIR, N.G. TROTT, E.H. BELCHER - The measurement of radioactive samples for clinical use. Brit. J. of Radiol. XXVII 332, 565 (1954)
- 6 - W.K. SINCLAIR - Radiation Dosimetry (Hine et Brownell edit.) p. 517 (1956)
- 7 - G.C. LAURENCE - The measurement of extra hard X rays and γ rays in roentgen. Can. J. of Research 15 A, 5, 67 (1957)
- 8 - R.M. Sternheiner - Stopping power per electron relative to air for fast β particles of energy E. Phys. Rev. 88, 851 (1952)
- 9 - L.V. SPENCER et F.H. ATTIX - Rad. Res. 3, 239 (1955)
- 10 - G.N. WHYTE - Measurement of the Bragg-Gray stopping power correction. Rad. Res. 6, 371 (1957)
- 11 - F.H. ATTIX, L. DE LAVERGNE et V.H. RITZ - Cavity ionisation as a function of wall material. J. Res. Nat. Bur. of Standards 60, 235 (1958)
- 12 - W.C. Roesch - Cavity chamber theory Radiology 71, 1, 109 (1960)
- 13 - Report of the I.C.R.U. 1959 NBS handbook n° 78 (1961)
- 14 - R.D. EVANS - Radioactivity units and standards. Nucl. 1, 2, 32 (1947)
- 15 - Z. BAY, W.B. MANN, H.H. SELIGER - Absolute measurement of Wair for ^{35}S beta rays. Rad. Res. 7, 6, 558 (1957)
- 16 - W. GROSS, C. WINGATE, G. FAILLA - Average energy Lost by ^{35}S beta rays per ion pair produced in air. Rad. Res 7, 6, 570 (1957)
- 17 - J.M. VALENTINE, S.C. CURRAN - Average energy expenditure per ion pair in gases and gas mixtures. Rep. Prog. Phys. 21, 1 (1958)
- 18 - F.H. ATTIX et V.H. RITZ - A determination of the γ ray émission of Radium. J. of Res. of the NBS 59, 5, 293 (1957)
- 19 - C. GARRETT - Modification of the basis for roentgen calibrations between 0,5 and 3 MeV. Can. J. Phys. 36, 149 (1958)
- 20 - K.K. AGLINTSEV, G.P. OSTROMUKHOVA et E.A. KHOL'NOVA - Izmeritel' naya. Teekh n° 12, 40-2 (1960)
- 21 - B. RAJEWSKY, A. SEWKOR - Constante de dose du Radium. Naturwissenschaften. 48, 7, 216 (1961)
- 22 - B. GROSS - The Compton current. Zeit. für Physik 155, 479 (1959)
- 23 - C. WINGATE, W. GROSS et G. FAILLA - Relative γ ray energy Loss per ion pair produced in water and in air. Rad. Res. 8, 5, 411 (1958)

- 24 - G. FAILLA - The distribution of energy imparted to a homogeneous medium non uniformly irradiated. Rad Res. 5, 205 (1956)
- 25 - R.K. CLARK et S.S. BRAR - Optimum Shape for cylindrical ionization chambers Nucl. 12 , 8, 28 (1954)
- 26 - J. ENGELMANN - Proceedings of the Symposium on basic principles of radioactivity and neutron measurements (Zurich 1957)
- 27 - Mme P. CURIE - J. Phys. Rad. 2, 795 (1912)
- 28 - W. SEBAOUN - Une nouvelle détermination de l'activité spécifique du Radium (thèse). Ann. Phys. 13, 1, 680 (1956)
- 29 - S. VUCCINO - Mesures absolues d'activité β . Application à la détermination du milligramme Ra équivalent (thèse) Ann. Phys. 13, 4, 147 (1959)
- 30 - J. DOMANUS et B. OSUCHOWSKI - The concept of "gramme équivalent of Radium for non point isotropic γ ray sources. Proc. of the symposium on metrology of radionuclides I.A.E.A. Vienne p. 405 (1960)
- 31 - Mme P. CURIE - Radioactivité (Hermann et Cie Edit.) p. 153 (1935)
- 32 - C.C. SMITH et H.H. SELIGER - Improvement in response of $4\pi\gamma$ ionization chambers. Rev. Sci. Instr. 24, 474 (1953)
- 33 - J. ENGELMANN et J. VAGNER - Dispositif de mesure des fortes sources émettrices γ . Rapport C.E.A. n° 527 (1956)
- 34 - H.M. WEISS - Absolute measurement of radioactive materials at the P.T.B. Proc. on metrology of radionuclides p. 53 (1960)
- 35 - Report of the I.C.R.U. 1959, NBS Handbook n° 78 p. 70 (1961)
- 36 - J.W.G. DALE, W.E. PERRY and R.F. PULFER. - $A\beta\gamma$ ionization chamber for substandards of radioactivity. Int. J. ap. Rad. and Is. 10, 2/3, 65 (1961)
- 37 - J.W.G. DALE - II Instrument response to γ radiation. Int. J. Ap. Rad. and Is. 10, 2/3, 72 (1961)
- 38 - J. ENGELMANN et B. GRINBERG - Chambre d'ionisation $\beta\gamma$. Int. J. Ap. Rad. and Is. 5, 63 (1959)
- 39 - J. ENGELMANN et H. ROQUEFORT - Ensemble de mesure d'activité β et γ par chambre d'ionisation. Proc. of the 2nd Int^{al} conference on medical electronics (1959)
- 40 - J. ENGELMANN. Etude des performances d'une chambre d'ionisation $4\pi\gamma$. Rapport C.E.A. n° 1539 (1960)
- 41 - J. VAGNER et J. ENGELMANN - Rapport à paraître
- 42 - T.N. WHITE, L.D. MARINELLI et G. FAILLA - A measurement of radiation in roentgens. Am. J. Roentgenol 44, 889 (1940)
- 43 - W. GROSS, C. WINGATE et G. FAILLA - Determination of disintegration rate for γ emitting isotopes. Radiology 69, 699 (1957)
- 44 - J. ENGELMANN - Sur une chambre d'ionisation en graphite du type $4\pi\gamma$. C.R. Acad. Sci. 249, 1268 (1959)
- 45 - R. EVANS and R. EVANS - Studies of self-absorption in γ ray sources. Rev. Mod. Phys. 20, 305 (1948)
- 46 - C.M. DAVISSON et R.D. EVANS - Gamma-ray absorption coefficients Rev. Mod. Phys. 24, 2, 79 (1952)
- 47 - S.J. WYARD - Radioactive source corrections for bremsstrahlung and scatter. Nucl. 13, 2, 79 (1952)
- 48 - D. STROMINGER, J.M. HOLLANDER, and G.T. SEABORG - Table of isotopes. Rev. of. Mod. Phys. 30, 2, II, 585 (1958)
- 49 - B.S. DZHELEPOV and L.K. PEKER - Decay schemes of radioactive nuclei. Pergamon Press (1961)

- 50 - W.E. PERRY et J.W.G. DALE - N.P.L. Cité dans Handbook 78 du NBS (1961)
- 51 - S. OFER et R. WIENER - Phys. Rev. 107, 1639 (1957)
- 52 - C.S. COOK et F.M. TOMNOVEC. Bull. Am. Phys. Soc. II, 2, 24 (1957)
- 53 - R.A. RICCI, CHILOSI, VARCACCIO - Nuovo Cim. 17, 4, 523 (1960)
- 54 - GIRGIS, VAN LIESHOUT - Physica (P.B.) 25, 2, 133 (1959)
- 55 - R.E. BELL and R.L. GRAHAM - Phys. Rev. 86, 212 (1952)
- 56 - G.L. KEISTER, E.B. LEE et F.H. SCHMIDT - Phys. Rev. 97, 451 (1955)
- 57 - R.A. RICCI - Physica (P.B.) 23, 692 (1957)
- 58 - L.K. BURTON et N.G. TROTT - J. Appl. Rad. and Is. 8, 1, 25 (1960)
- 59 - H. JAFFE - N.S.A. 9 n° 24 B (1955)
- 60 - L.L. BAGGERLY, P. MARMIER, F. BOEHM and J.W. DU MOND - Phys. Rev. 100, 1364 (1955)
- 61 - C. NORDLING, K. SIEGBAHN, E. SOKOLOWSKI, A. WAPSTRA - Nucl. Phys. I, 326 (1956)
- 62 - M. BUNKER et J. STARNER - Phys. Rev. 99, (1955)
- 63 - G. ZORZOLI Nuovo Cim. 5, 289 (1957)
- 64 - U. JONES et E. JENSEN - Phys. Rev. 97, 1031 (1955)
- 65 - R. JAEGER - Arch. Techn. Messen. V. 3211 (1940)
- 66 - W. HUBNER - Der elektrometrische Photozellen Kompensator, ein neues Gerät zur Messung der Dosis und Dosisleistung ionisieren der Strahlung-Strahlentherapie. 96, 461 (1955)
- 67 - J. WEILL - Technique du contrôle des réacteurs nucléaires (thèse) Rapport C.E.A. N° 323 (1954)
- 68 - G. FRIEDLING, A. ROGOZINSKI et J. WEILL. Mesure des courants continus faibles. Génie Atomique II, V, 20 (1960)
- 69 - COSTRELL, et ATTIX. Automatic timer simplifies small current measurements. Nucl. 15, 2, 83 (1957)
- 70 - A. GANDY - Préparation et étalonnage des sources radioactives de référence. A.I.E.A. (Vienne) Publication N° 14, p. 28 (1961)
- 71 - H.O. WYCKOFF et F.H. ATTIX - Design criteria for free-air ionization chambers. N.B.S. Handbook 64 (1957)
- 72 - H.O. WYCKOFF - Measurement of ^{60}Co and ^{137}Cs gamma-rays with a Free-Air Chamber. J. of Research N.B.S. 64 C, 2. 87 (1960)
- 73 - P. SAVEL - Détermination de l'intensité absolue des rayons γ par la méthode d'ionisation. Cah. Phys. Fr. 19, 39 (1944)
- 74 - P. SAVEL. Utilisation pratique d'une chambre d'ionisation à pression pour la détermination de l'intensité absolue des rayons γ . J. de Phys. et le Radium 18, 8/9, 518 (1957)
- 75 - C. BAKKER et E. SEGRE. Phys. Rev. 81, 849 (1951)
- 76 - W. MAYNEORD, The mathematical theory of integral dose in Radium therapy Brit. J. Radiol. 18, 12 (1945)
- 77 - R. LOEVINGER, E.M. JAPHA, and G.L. BROWNELL. Radiation Dosimetry (Hine et Brownell edit) p. 782 (1956)
- 78 - N. GOOSEV, E. KOVALEV, V. POPOV. Gamma radiation inside and outside extended sources. Conf. Genève 15/P/2088 (1958)
- 79 - R. GRAHAM, J. WOLFSON, R. BELL. Can J. Phys. 30, 5, 459 (1952).
- 80 - H. HOUTERMANS Z. Phys. 149, 215 (1957).

TABLE DES MATIÈRES

	Pages
INTRODUCTION	5
 CHAPITRE I - MESURES ABSOLUES INDIRECTES D'ACTIVITE PAR CHAMBRES D'IONISATION GAMMA	
Chambres-cavités	7
Chambres à air libre	8
Calcul du coefficient K et de l'énergie efficace γ d'un radioélément	8
Principe de la mesure du coefficient K d'un radioélément	11
 CHAPITRE II - UTILISATION D'UNE CHAMBRE CAVITE POUR LA DETERMINATION DU COEFFICIENT K DU RADIUM	
Dispositif utilisé	13
Source de Radium. Contenu réel et efficace	14
Corrections d'hygrométrie	17
de pouvoir d'arrêt	18
de géométrie	18
Résultats expérimentaux	20
 CHAPITRE III - MESURES RELATIVES D'ACTIVITE PAR CHAMBRES D'IONISATION γ	
Chambre grand condensateur	23
Chambre à puits : influence des paramètres géométriques sur sa réponse	24
courbe de sensibilité : étalonnage	27
réalisation de modèles adaptés à différentes gammes d'activité	32
chambre pour mesure des émetteurs β par rayonnement de freinage	32
 CHAPITRE IV - CHAMBRE-CAVITE A HAUTE EFFICACITE. APPLICATION A LA DETERMINATION DU COEFFICIENT K DE QUELQUES RADIOELEMENTS	
Description de l'appareil et principe	37
Facteurs de correction de géométrie	38
d'absorption dans la paroi	39
d'autoabsorption dans la solution	40
de diffusion des γ dans les parois extérieures	41
Correction pour tenir compte du rayonnement de freinage des β	44
du rayonnement de fluorescence	45
Détermination du coefficient K de quelques radioéléments	48
 CHAPITRE V - DISPOSITIFS ELECTROMETRIQUES ASSOCIES AUX CHAMBRES D'IONISATION	
Mesure du courant par la chute de tension dans une résistance de haute valeur	51
Mesure de la charge intégrée due au courant d'ionisation	52

Méthode de Townsend avec enregistrement automatique du temps	53
Précision de la méthode	54
CONCLUSION	57
BIBLIOGRAPHIE	59

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

MESURE DES FLUX DE NEUTRONS THERMIQUES PAR DETECTEURS D'ACTIVATION

Vu et approuvé
Paris, le 26 mai 1962
Le Doyen de la Faculté des Sciences,
Marc ZAMANSKY

Vu
et Permis d'imprimer :
Le Recteur de l'Académie
de Paris,
Jean ROCHE

IMP. LOUIS-JEAN — GAP

Dépôt légal n° 191 — 1962

